

Translation

# PATENT COOPERATION TREATY

## PCT

### INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference <b>PAT99122PCT</b>	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. <b>PCT/EP00/07890</b>	International filing date (day/month/year) <b>14 August 2000 (14.08.00)</b>	Priority date (day/month/year) <b>16 August 1999 (16.08.99)</b>
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC <b>C08G 63/12</b>		
Applicant <b>BASF COATINGS AG</b>		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.	
2. This REPORT consists of a total of <u>4</u> sheets, including this cover sheet.  <input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).  These annexes consist of a total of _____ sheets.	
3. This report contains indications relating to the following items: <ul style="list-style-type: none"> <li>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</li> <li>II <input type="checkbox"/> Priority</li> <li>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</li> <li>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</li> <li>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</li> <li>VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited</li> <li>VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application</li> <li>VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application</li> </ul>	

Date of submission of the demand <b>01 March 2001 (01.03.01)</b>	Date of completion of this report <b>08 January 2002 (08.01.2002)</b>
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

Form PCT/IPEA/409 (cover sheet) (July 1998)



## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP00/07890

## I. Basis of the report

## 1. With regard to the elements of the international application:\*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:  
pages \_\_\_\_\_ 1-38 \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☒ the claims:  
pages \_\_\_\_\_ 1-20 \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

## 2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b))
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

## 3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

100

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 00/07890

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

## 1. Statement

Novelty (N)	Claims	9, 12, 16, 20	YES
	Claims	1-8, 10, 11, 13-15, 17-19	NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	9, 12, 16, 20	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-20	YES
	Claims		NO

## 2. Citations and explanations

## 1. Reference is made to the following documents:

D1 = DE-A-198 26 715 (BASF), 28 January 1999  
(1999-01-28);

D2 = DE-A-40 24 204 (BASF LACKE & FARBEN),  
6 February 1992 (1992-02-06) mentioned in the  
application;

D3 = GB-A-778 924 (NATIONAL DISTILLERS PRODUCTS  
CORP.), 17 July 1957 (1957-07-17);

D4 = EP-A-0 940 459 (BASF COATINGS AG),  
8 September 1999 (1999-09-08).

## 2. Novelty:

D1 discloses (Claim 1, examples) 2,4-diethyloctane-  
1,5-diol and its use in producing coatings. Hence,  
the subject matter of Claims 1-8, 10, 11, 13-15,  
17-19 is not novel in view of D1 (PCT Article  
33(2)).

100

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 00/07890

Document D2 discloses no octanediols and is thus not prejudicial to the novelty of the subject matter of the claims.

Document D3 discloses (Claim 6, page 4, lines 75-84) 3,6-diethyloctane-1,8-diol and its use in producing oligomers and/or polymers. Hence, the subject matter of Claims 1, 2, 4, 7-10 and 18 of D3 is anticipated and does not satisfy the requirements of PCT Article 33(2).

3. The subject matter of dependent Claims 9, 12, 16 and 20 does not appear to contribute to an inventive step.

100



## TENT COOPERATION TRE /

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner  
 US Department of Commerce  
 United States Patent and Trademark  
 Office, PCT  
 2011 South Clark Place Room  
 CP2/5C24  
 Arlington, VA 22202  
 ETATS-UNIS D'AMERIQUE  
 in its capacity as elected Office

<b>Date of mailing</b> (day/month/year) 18 April 2001 (18.04.01)	
<b>International application No.</b> PCT/EP00/07890	<b>Applicant's or agent's file reference</b> PAT99122PCT
<b>International filing date</b> (day/month/year) 14 August 2000 (14.08.00)	<b>Priority date</b> (day/month/year) 16 August 1999 (16.08.99)
<b>Applicant</b> BAUMGART, Hubert et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

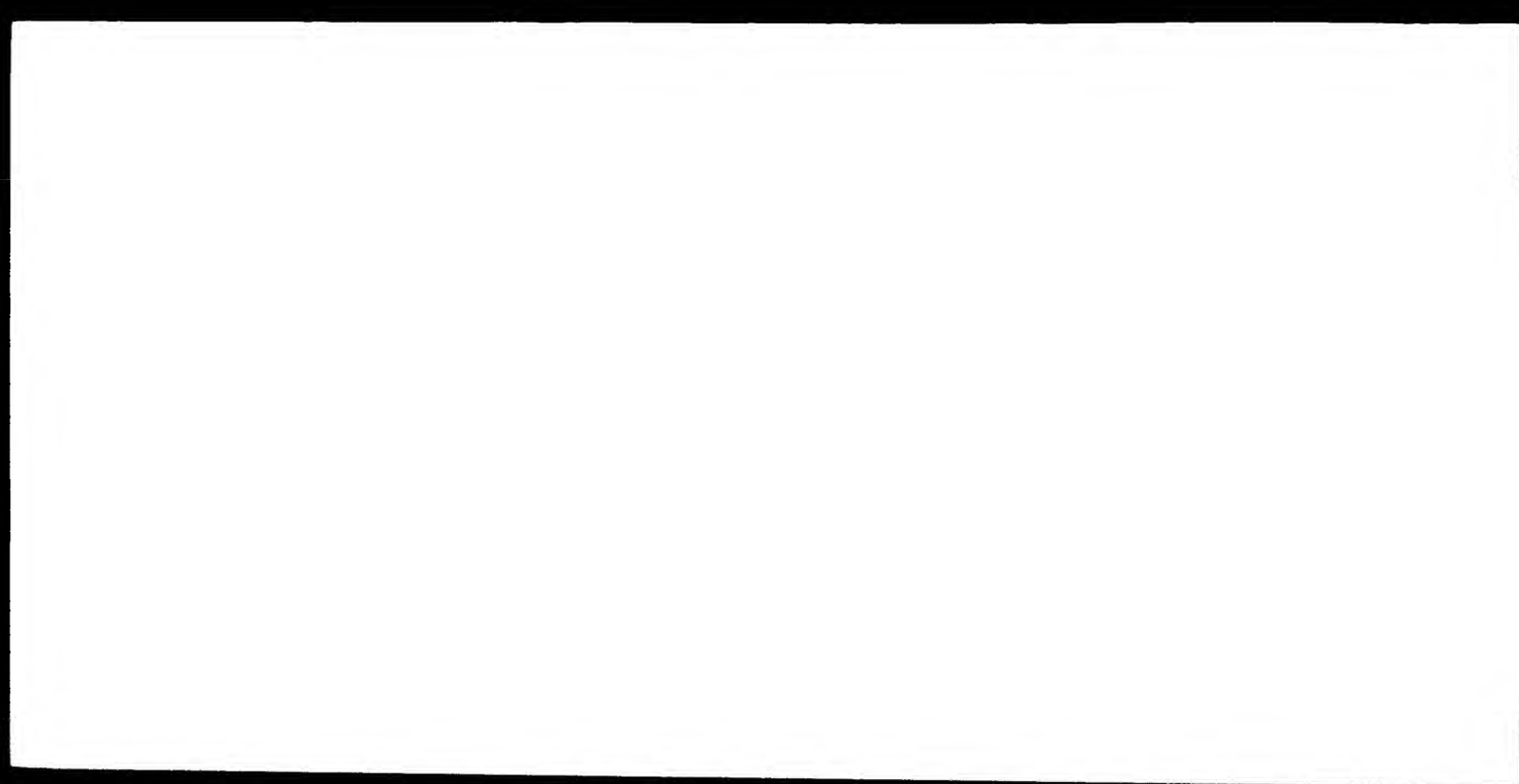
☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

01 March 2001 (01.03.01)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:2. The election ☒ was☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer Olivia TEFY Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	---



# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

REC'D 11 JAN 2002

WIPC

PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)



Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts PAT 99122 PCT	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/07890	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 14/08/2000	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 16/08/1999
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C08G63/12		
Anmelder BASF COATINGS AG et al.		

- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
  - ☐ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  01/03/2001	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  08.01.2002
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:   Europäisches Patentamt D-80298 München Tel: +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter  Ramos Flores, C  Tel Nr +49 89 2399 8310 



**I. Grundlage des Berichts**

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):  
**Beschreibung, Seiten:**

1-38                      ursprüngliche Fassung

**Patentansprüche, Nr.:**

1-20                      ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung,              Seiten:
- ☐ Ansprüche,                Nr.:
- ☐ Zeichnungen,             Blatt:



# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/07890

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

## V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

### 1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	9,12,16,20
	Nein: Ansprüche	1-8,10,11,13-15,17-19
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	
	Nein: Ansprüche	9,12,16,20
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-20
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen  
**siehe Beiblatt**





1. Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

D1: DE 198 26 715 A (BASF AG) 28. Januar 1999 (1999-01-28)

D2: DE 40 24 204 A (BASF LACKE & FARBEN) 6. Februar 1992 (1992-02-06) in der Anmeldung erwähnt

D3: GB 778 924 A (NATIONAL DISTILLERS PRODUCTS CORP.) 17. Juli 1957 (1957-07-17)

D4: EP-A-0 940 459 (BASF COATINGS AG) 8. September 1999 (1999-09-08)

2. Neuheit:

D1 offenbart (Anspruch 1, Beispiele) 2,4-Diethyloctan-1,5-diol und deren Verwendung zur Herstellung von Beschichtungen. Somit erscheint der Gegenstand der Ansprüche 1-8, 10, 11, 13-15, 17-19 nicht neu im Hinblick auf D1 (Art. 33(2) PCT).

Dokument D2 offenbart keine Octandiole und ist somit nicht neuheitsschädlich für den Gegenstand der Ansprüche.

Dokument D3 offenbart (Anspruch 6, Seite 4, Zeilen 75-84) 3,6-Diethyloctan-1,8-Diol und dessen Verwendung zur Herstellung von Oligomere/Polymeren. Somit ist der Gegenstand der Ansprüche 1, 2, 4, 7-10 und 18 von D3 vorweggenommen und erfüllt nicht die Erfordernisse des Art. 33(2) PCT.

3. Der Gegenstand der abhängigen Ansprüche 9, 12, 16 und 20 scheint keinen Beitrag zu einer erfinderischen Tätigkeit zu leisten.



**PATENT COOPERATION TREATY**  
**PCT**  
**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
(PCT Article 18 and Rules 43 and 44)

Applicant's or agent's file reference <b>PAT99122PCT</b>	FOR FURTHER ACTION	see Notification of Transmittal of International Search Report (Form PCT ISA 220) as well as, where applicable, item 5 below
International application No. <b>PCT/EP00/07890</b>	International filing date (day month year) <b>14/08/2000</b>	(Earliest) Priority Date (day month year) <b>16/08/1999</b>
Applicant <b>BASF COATINGS AG</b>		

This international search report has been prepared by this International Searching Authority and is transmitted to the applicant according to Article 18. A copy is being transmitted to the International Bureau.

This international search report consists of a total of 4 sheets.

☒ It is also accompanied by a copy of each prior art document cited in this report.

1. ☐ Certain claims were found unsearchable (See Box I)
2. ☐ Unity of invention is lacking (See Box II)
3. ☐ The international application contains disclosure of a nucleotide and/or amino acid sequence listing and the international search was carried out on the basis of the sequence listing  

☐ filed with the international application.  
☐ furnished by the applicant separately from the international application.  
☐ but not accompanied by a statement to the effect that it did not include matter going beyond the disclosure in the international application as filed  
☐ transcribed by this Authority.
4. With regard to the title,  

☒ the text is approved as submitted by the applicant  
☐ the text has been established by this Authority to read as follows:
5. With regard to the abstract,  

☐ the text is approved as submitted by the application  
☒ the text has been established, according to Rule 38.2(b), by this Authority as it appears in Box III. The applicant may, within one month from the date of mailing of this international search report, submit comments to this Authority.
6. Figure No.      ☐ as suggested by the applicant ☐ None of the figures  

☐ because the applicant failed to suggest a figure.  
☐ because this figure better characterizes the invention.



<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>			
<b>IPK C08G63/12 C08G18/42 C09D167/00 C08L101/00 C09D201/00 C09J201/00</b>			
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC			
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>			
Minimum documentation search (classification system followed by classification symbols) <b>IPK 7 C08G C09D</b>			
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched			
Electronic data based consulted during the international search (name of data based and, where practicable, search terms used) <b>WPI Data, PAJ, CHEM ABS Data, EPO-Internal</b>			
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>			
category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages		Relevant to claim No.
X	DE 198 26 715 A (BASF AG) 28. January 1999 (1999-01-28)		1-8, 10, 11, 13-15, 17-19 20
Y	See Claims 1-5; Example Page 4, line 31 - line 41		
Y	DE 40 24 204 A (BASF LACKE & FARBEN) 6. February 1992 (1992-02-06) review the entire document summary; Claim 15		20
X	GB 778 924 A (NATIONAL DISTILLERS PRODUCTS CORP.) 17 July 1957 (1957-07-17) Claims 1,6; example I Page 4, line 75 - line 85		1,2,4, 7-10
- / - -			
x	Future documents are listed in the continuation of Box C		x
*	Special categories of cited documents:		"I"
"A"	document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X"	later document published after the international filing date or priority
"E"	earlier document but published on or after the international filing date	"Y"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"I"	document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to person skilled in the art.
"O"	document referring to an oral disclosure, use exhibition or other means		document member of the same patent family
"P"	document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the international search report	
8. December 2000		19/12/2000	
Name and mailing address of the ISA/		Authorized officer	
Euroäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL-2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70)340-2040 Tx 31 651 epo nl, Fax (+31-70)340-3016		Krische, D.	



C(Continuation). DOCUMENT CONSIDERED TO RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passes	Relevant to claim No.
P, X	<p>EP 0 940 459 A (BASF COATINGS AG)  8. SEPTEMBER 1999 (1999-09-03)  CLAIMS 1, 6-9, 14, 15, 36; EXAMPLE  PAGE 2, LINE 5- PAGE 3, LINE 21  PAGE 8, LINE 20 - LINE 31</p> <p style="text-align: center;">---</p> <p>DATABASE WP  SECTION CH. WEEK 1998/01  DERWENT PUBLICATIONS Ltd., LONDON, GB;  CLASS A23. AN 1998-004239  * P002155007  -&amp; JP 09 272731 A (KURARAY CO LTD),  REVIEW THE ENTIRE DOCUMENT  SUMMARY</p> <p style="text-align: center;">---</p>	<p>1-9  18-20</p> <p>1, 7-11,  13</p>





## Box III TEXT OF THE ABSTRACT (Continuation of item 5 of the first sheet)

Zeile 4 bitte nach "Lackierungen." zufügen: "Insbesondere werden Polyester auf Basis von 2,4-Diethyloctan-1,5-diol und ihre Verwendung in 2k-Polyurethanlacken beschrieben.



INTERNATIONAL SEARCH REPORT  
Information on patent family member

International application No.  
PCT/EP00/07890

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 19826715 A	28-01-1999	KEINE	
DE 4024204 A	06-02-1992	AT 115171 T	15-12-1994
		BR 9106715 A	13-07-1993
		CA 2087338 A	01-02-1992
		DE 59103830 D	19-01-1995
		DK 541604 T	08-05-1995
		WO 9202590 A	20-02-1992
		EP 0541604 A	19-05-1993
		ES 2067946 T	01-04-1995
		JP 7033496 B	12-04-1995
		US 5326820 A	05-07-1994
GB 778924 A		KEINE	
EP 0940459 A	08-09-1999	DE 19809643 A	09-09-1999
JP 9272731 A	21-10-1997	KEINE	



VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT  
AM DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts <b>PAT99122PCT</b>	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5	
Internationales Aktenzeichen <b>PCT/EP 00/07890</b>	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) <b>14/08/2000</b>	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) <b>16/08/1999</b>
Anmelder  <b>BASF COATINGS AG</b>		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 4 Blätter.



Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.



Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das



in der internationalen Anmeldung in Schriftlicher Form enthalten ist.



zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.



bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.



bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.



Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.



Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der **Bezeichnung der Erfindung**



wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.



wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der **Zusammenfassung**



wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.



wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der **Zeichnungen** ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. \_\_\_\_\_



wie vom Anmelder vorgeschlagen



weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.



weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.



keine der Abb.



Feld III

WORTLAUT DER ZUSAMMENFASSUNG (Fortsetzung von Punkt 5 auf Blatt 1)

Zeile 4 bitte nach "Lackierungen." zufügen: "Insbesondere werden Polyester auf Basis von 2,4-Diethyloctan-1,5-diol und ihre Verwendung in 2k-Polyurethanlacken beschrieben.





(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
22. Februar 2001 (22.02.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 01/12696 A1**

(51) Internationale Patentklassifikation: C08G 63/12,  
18/42, C09D 167/00, C08L 101/00, C09D 201/00, C09J  
201/00

(DE). RINK, Heinz-Peter [DE/DE]; Lohofener Weg  
44, D-48153 Münster (DE). KRATZ, Detlef [DE/DE];  
Eckenerstr. 2, D-69161 Heidelberg (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/07890

(74) Anwalt: FITZNER, Uwe; Lintorfer Strasse 10, D-40878  
Ratingen (DE).

(22) Internationales Anmeldedatum:  
14. August 2000 (14.08.2000)

(81) Bestimmungsstaaten (national): AU, BR, JP, KR, MX,  
PL, US.

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(84) Bestimmungsstaaten (regional): europäisches Patent (AT,  
BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC,  
NL, PT, SE).

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
199 38 758.3 16. August 1999 (16.08.1999) DE

**Veröffentlicht:**

- Mit internationalem Recherchenbericht.
- Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden  
Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen  
eintreffen.

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme  
von US): BASF COATINGS AG [DE/DE]; Glasuritstr. 1,  
D-48165 Münster (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): BAUMGART, Hu-  
bert [DE/DE]; Am Dornbusch 44a, D-48163 Münster

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen  
Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on  
Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe  
der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: OLIGOMERS AND POLYMERS ON THE BASIS OF DIETHYL-OCTANEDIOLS, METHOD FOR PRODUCING  
SAME AND THE USE THEREOF

(54) Bezeichnung: OLIGOMERE UND POLYMERE AUF DER BASIS VON DIETHYLOCTANDIOLEN, VERFAHREN ZU  
IHRER HERSTELLUNG UND IHRE VERWENDUNG

(57) Abstract: The invention relates to oligomers and polymers which contain at least one positional isomer diethyl octanediol  
as a monomer unit. The invention also relates to a method for producing the same and to the use thereof for producing moulding  
compounds, adhesives and coating materials, especially lacquers. The invention especially relates to polyesters on the basis of 2,4-  
diethyloctane-1,5-diol and the use thereof in 2k-polyurethane lacquers.

(57) Zusammenfassung: Oligomere und Polymere, die mindestens ein stellungsisomeres Diethyloctandiol als Monomerbaustein  
enthalten. Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung zur Herstellung von Formmassen, Klebstoffen und Beschichtungs-  
stoffen, insbesondere Lackierungen. Insbesondere werden Polyester auf Basis von 2,4-Diethyloctan-1,5-diol und ihre Verwendung  
in 2k-Polyurethanlacken beschrieben.



WO 01/12696 A1



## Oligomere und Polymere auf der Basis von Diethyloctandiolen, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung

Die vorliegende Erfindung betrifft neue Oligomere und Polymere, die  
5 stellungsisomere Diethyloctandiole als Monomerbausteine enthalten. Außerdem  
betrifft die vorliegende Erfindung die Verwendung der neuen Oligomeren und  
Polymeren zur Herstellung von Formmassen, Klebstoffen und  
Beschichtungstoffen, insbesondere Lacken, sowie deren Folgeprodukte, d.h. die  
Formteile, Folien, Fasern, Klebschichten und Beschichtungen, insbesondere  
10 Lackierungen.

Zur Flexibilisierung von Polyestern oder Polyesterbausteine enthaltenden  
Copolymeren und hiermit hergestellten Formteilen, Klebschichten und  
Beschichtungen, insbesondere Lackierungen, werden üblicherweise die C6-  
15 Bausteine Hexandiol-1,6 und/oder Adipinsäure verwendet. Außerdem sind  
Polyester und Polyester-co-polyurethane, die 2-Methyl-1,8-octandiol sowie  
gegebenenfalls Nonan-1,9-diol als C9-Monomerbausteine einkondensiert  
enthalten, aus zahlreichen japanischen Patentschriften wie beispielsweise JP-A-  
63182330, JP-A-01215876, JP-A-01242674, JP-A-02264082, JP-A-06329751,  
20 JP-A-0493316, JP-A-02264082, JP-A-02147238 oder JP-A-02041379, der  
europäischen Patentschrift EP-A-0 562 577 oder aus der britischen Patentschrift  
GB-A-2248844 bekannt. Des weiteren geht aus der japanischen Patentschrift JP-  
A-09272731 ein Polyester hervor, der 2,7-Dimethyl-1,8-octandiol als C10-  
Monomerbaustein enthält.

25

Diese Oligomeren und Polymeren weisen bereits gute anwendungstechnische  
Eigenschaften auf, indes stößt man bei der Variation ihres Eigenschaftsprofils,  
beispielsweise der weiteren Flexibilisierung, an eine Grenze, bei deren  
Überschreiten sich Nachteile bemerkbar machen, etwa eine Verringerung der  
30 Härte. Will man daher ihre anwendungstechnischen Eigenschaften weiter  
variieren und verbessern, damit sie neuen Verwendungszwecken zugeführt

werden können und/oder in ihren bisherigen Verwendungszwecken neue Vorteile bieten, wird es notwendig, neue Monomerbausteine und neue Oligomere und Polymere bereitzustellen.

- 5 Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es daher, neue Oligomere und Polymere als Alternative zu den bisher bekannten bereitzustellen. Dabei sollen die neuen Polymeren und Oligomeren die vorteilhaften Eigenschaften der bekannten Oligomeren und Polymeren bewahren und zusätzlich neue Möglichkeiten bieten, das Eigenschaftsprofil in vorteilhafter Weise breit zu variieren, so daß sie auch für  
10 neue Verwendungszwecke in Betracht kommen.

Demgemäß wurden die neuen Oligomeren und Polymeren gefunden, die mindestens ein stellungsisomeres Diethyloctandiol als Monomerbaustein enthalten.

15

Im folgenden werden diese neue Oligomeren und Polymeren als „erfindungsgemäße Oligomere und Polymere“ bezeichnet.

- Außerdem wurden die neuen Formmassen, Klebstoffe und Beschichtungsstoffe  
20 gefunden, die mindestens ein erfindungsgemäßes Oligomer und/oder Polymer enthalten. Im folgenden werden diese neuen Formmassen, Klebstoffe und Beschichtungsstoffe als „erfindungsgemäße Formmassen, Klebstoffe und Beschichtungsstoffe“ bezeichnet.

- 25 Des weiteren wurden neue Formteile, Folien und Fasern gefunden, die aus den erfindungsgemäßen Formmassen herstellbar sind. Im folgenden werden sie als „erfindungsgemäße Formteile, Folien und Fasern“ bezeichnet.

- Ferner wurden neue Klebschichten gefunden, die aus den erfindungsgemäßen  
30 Klebstoffen herstellbar sind und im folgenden als „erfindungsgemäße Klebschichten“ bezeichnet werden.

Nicht zuletzt wurden neue Beschichtungen gefunden, die aus den erfindungsgemäßen Beschichtungsstoffen herstellbar sind und im folgenden als „erfindungsgemäße Beschichtungen“ bezeichnet werden.

5

Darüber hinaus wurden neue Substrate gefunden, die mindestens eine erfindungsgemäße Klebschicht und/oder mindestens eine erfindungsgemäße Beschichtung aufweisen und im folgenden als „erfindungsgemäße Substrate“ bezeichnet werden.

10

Im Rahmen der vorliegenden Erfindung werden unter Oligomeren Verbindungen verstanden, welche 2 bis 15 wiederkehrende Monomereinheiten enthalten. Ergänzend wird auf Römpp Lexikon Lacke und Druckfarben, Georg Thieme Verlag, Stuttgart, New York, 1998, Seite 425, »Oligomere«, verwiesen.

15

Demgegenüber werden im Rahmen der vorliegenden Erfindung unter Polymeren Verbindungen verstanden, welche mehr als 10, insbesondere mehr als 15, wiederkehrende Monomereinheiten enthalten. Ergänzend wird auf Römpp Lexikon Lacke und Druckfarben, Georg Thieme Verlag, Stuttgart, New York, 1998, Seite 464, »Polymere«, verwiesen.

20

Der wesentliche Bestandteil der erfindungsgemäßen Oligomeren und Polymeren ist mindestens ein stellungsisomeres Diethyloctandiol.

25 Die erfindungsgemäß zu verwendenden stellungsisomeren Diethyloctandiol enthalten eine lineare C8-Kohlenstoffkette.

Bezüglich der beiden Ethylgruppen weist die C8-Kohlenstoffkette das folgende Substitutionsmuster auf: 2.3, 2.4, 2.5, 2.6, 2.7, 3.4, 3.5, 3.6 oder 4.5.

30 Erfindungsgemäß ist es von Vorteil, wenn die beiden Ethylgruppen in 2,4-Stellung stehen, d. h., daß es sich um 2,4-Diethyloctandiole handelt.

Bezüglich der beiden Hydroxylgruppen weist die C8-Kohlenstoffkette das folgende Substitutionsmuster auf: 1,2, 1,3, 1,4, 1,5, 1,6, 1,7, 1,8, 2,3, 2,4, 2,5, 2,6, 2,7, 2,8, 3,4, 3,5, 3,6, 3,7, 3,8, 4,5, 4,6, 4,8, 5,6, 5,7, 5,8, 6,7, 6,8 oder 7,8.

- 5 Erfindungsgemäß ist es von Vorteil, wenn die beiden Hydroxylgruppen in 1,5-Stellung stehen, d. h., daß es sich um Diethyloctan-1,5-diole handelt.

Die beiden Substitutionsmuster werden in beliebiger Weise miteinander kombiniert, d. h., daß es sich bei den erfindungsgemäß zu verwendenden

Diethyloctandiole um

2,3-Diethyloctan-1,2-, -1,3-, -1,4-, -1,5-, -1,6-, -1,7-, -1,8-, -2,3-, -2,4-, -2,5 -, -  
2,6-, -2,7-, -2,8-, -3,4-, -3,5-, -3,6-, -3,7-, -3,8 -, -4,5-, -4,6-, -4,7-, -4,8-, -5,6 -, -  
5,7-, -5,8-, -6,7-, -6,8- oder -7,8-diol,

15

2,4-Diethyloctan-1,2-, -1,3-, -1,4-, -1,5-, -1,6-, -1,7-, -1,8-, -2,3-, -2,4-, -2,5 -, -  
2,6-, -2,7-, -2,8-, -3,4-, -3,5-, -3,6-, -3,7-, -3,8 -, -4,5-, -4,6-, -4,7-, -4,8-, -5,6 -, -  
5,7-, -5,8-, -6,7-, -6,8- oder -7,8-diol,

- 20 2,5-Diethyloctan-1,2-, -1,3-, -1,4-, -1,5-, -1,6-, -1,7-, -1,8-, -2,3-, -2,4-, -2,5 -, -  
2,6-, -2,7-, -2,8-, -3,4-, -3,5-, -3,6-, -3,7-, -3,8 -, -4,5-, -4,6-, -4,7-, -4,8-, -5,6 -, -  
5,7-, -5,8-, -6,7-, -6,8- oder -7,8-diol,

- 25 2,6- Diethyloctan-1,2-, -1,3-, -1,4-, -1,5-, -1,6-, -1,7-, -1,8-, -2,3-, -2,4-, -2,5 -, -  
2,6-, -2,7-, -2,8-, -3,4-, -3,5-, -3,6-, -3,7-, -3,8 -, -4,5-, -4,6-, -4,7-, -4,8-, -5,6 -, -  
5,7-, -5,8-, -6,7-, -6,8- oder -7,8-diol,

- 2,7- Diethyloctan-1,2-, -1,3-, -1,4-, -1,5-, -1,6-, -1,7-, -1,8-, -2,3-, -2,4-, -2,5 -, -  
2,6-, -2,7-, -2,8-, -3,4-, -3,5-, -3,6-, -3,7-, -3,8 -, -4,5-, -4,6-, -4,7-, -4,8-, -5,6 -, -  
30 5,7-, -5,8-, -6,7-, -6,8- oder -7,8-diol,

3,4-Diethyloctan-1,2-, -1,3-, -1,4-, -1,5-, -1,6-, -1,7-, -1,8-, -2,3-, -2,4-, -2,5 -, -  
2,6-, -2,7-, -2,8-, -3,4-, -3,5-, -3,6-, -3,7-, -3,8 -, -4,5-, -4,6-, -4,7-, -4,8-, -5,6 -, -  
5,7-, -5,8-, -6,7-, -6,8- oder -7,8-diol.

- 5 3,5-Diethyloctan-1,2-, -1,3-, -1,4-, -1,5-, -1,6-, -1,7-, -1,8-, -2,3-, -2,4-, -2,5 -, -  
2,6-, -2,7-, -2,8-, -3,4-, -3,5-, -3,6-, -3,7-, -3,8 -, -4,5-, -4,6-, -4,7-, -4,8-, -5,6 -, -  
5,7-, -5,8-, -6,7-, -6,8- oder -7,8-diol,

- 3,6-Diethyloctan-1,2-, -1,3-, -1,4-, -1,5-, -1,6-, -1,7-, -1,8-, -2,3-, -2,4-, -2,5 -, -  
10 2,6-, -2,7-, -2,8-, -3,4-, -3,5-, -3,6-, -3,7-, -3,8 -, -4,5-, -4,6-, -4,7-, -4,8-, -5,6 -, -  
5,7-, -5,8-, -6,7-, -6,8- oder -7,8-diol oder um

- 4,5-Diethyloctan-1,2-, -1,3-, -1,4-, -1,5-, -1,6-, -1,7-, -1,8-, -2,3-, -2,4-, -2,5 -, -  
2,6-, -2,7-, -2,8-, -3,4-, -3,5-, -3,6-, -3,7-, -3,8 -, -4,5-, -4,6-, -4,7-, -4,8-, -5,6 -, -  
15 5,7-, -5,8-, -6,7-, -6,8- oder -7,8-diol

handelt.

- Die erfindungsgemäß zu verwendenden stellungsisomeren Diethyloctandiole  
20 können als einzelne Verbindungen oder als Gemische von zwei oder mehr  
Diethyloctandiolen für die Herstellung der erfindungsgemäßen Oligomeren und  
Polymeren verwendet werden.

- Besondere Vorteile resultieren aus der Verwendung von 2,4-Diethyloctan-1,5-  
25 diol.

- Die erfindungsgemäß zu verwendenden stellungsisomeren Diethyloctandiole sind  
an sich bekannte Verbindungen und können mit Hilfe üblicher und bekannter  
Synthesemethoden der Organischen Chemie wie die basenkatalysierte  
30 Aldolkondensation hergestellt werden oder sie fallen als Nebenprodukte  
chemischer Großsynthesen wie der Herstellung von 2-Ethyl-hexanol an.

Ihr Anteil an den erfindungsgemäßen Oligomeren und Polymeren kann außerordentlich breit variieren und richtet sich nach dem jeweiligen Verwendungszweck der erfindungsgemäßen Oligomeren und Polymeren und deren hierfür erforderlichen Eigenschaftsprofil. Erfindungsgemäß ist es von Vorteil, wenn sie in den Ausgangsprodukten der erfindungsgemäßen Oligomeren und Polymeren in einer Menge von, bezogen auf die Ausgangsprodukte, 2 bis 60 Gew.-%, bevorzugt 3 bis 55 Gew.-%, besonders bevorzugt 5 bis 50 Gew.-% und insbesondere 7 bis 45 Gew.-% enthalten sind.

10

Die erfindungsgemäßen Oligomere und Polymere entstammen den üblichen und bekannten Oligomer- und Polymerklassen. Ergänzend wird auf Römpp Lexikon Lacke und Druckfarben, Georg Thieme Verlag, Stuttgart, New York, 1998, Seite 464, »Polymere«, verwiesen. Wesentlich ist, daß die erfindungsgemäß zu verwendenden stellungsisomeren Diethyloctandiole bei der Herstellung der erfindungsgemäßen Oligomeren und Polymeren in diese als Monomerbausteine eingebaut werden.

Die erfindungsgemäßen Oligomeren und Polymeren sind linear oder verzweigt aufgebaut. Es ist auch möglich, daß in den erfindungsgemäßen Oligomeren und Polymeren lineare Ketten mit hochverzweigten Ketten kombiniert sind. Die Oligomer- und Polymerketten sind hinsichtlich der Monomerbausteine blockartig, kammartig oder statistisch aufgebaut. Selbstverständlich können diese Aufbauprinzipien in beliebiger Weise miteinander kombiniert werden. Des weiteren können die erfindungsgemäßen Oligomeren und Polymeren eine Kern-Schale-Struktur aufweisen und/oder als vernetzte Mikroteilchen vorliegen.

Dementsprechend kann auch das zahlenmittlere Molekulargewicht  $M_n$  und die Uneinheitlichkeit des Molekulargewichts  $M_w/M_n$  der erfindungsgemäßen Oligomeren und Polymeren je nach Verwendungszweck und Struktur außerordentlich breit variieren. Erfindungsgemäß sind zahlenmittlere

30



Molekulargewichte  $M_n$  von 700 bis 2.000.000 von Vorteil. Innerhalb dieses Bereichs bieten zahlenmittlere Molekulargewichte  $M_n$  von 1.000 bis 1.500.000, insbesondere 2.000 bis 1.000.000, weitere besondere Vorteile. Hierbei liegt die Uneinheitlichkeit des Molekulargewichts  $M_w/M_n$  vorteilhafterweise bei 1,1 bis  
5 20, vorzugsweise 1,2 bis 15 und insbesondere 1,3 bis 10.

Beispiele vorteilhafter erfindungsgemäßer Oligomere und Polymere sind Polyadditionsharze, Polykondensationsharze oder Harze, die durch Polyaddition und Polykondensation hergestellt werden. Ergänzend wird auf Römpf Lexikon  
10 Lacke und Druckfarben. Georg Thieme Verlag, Stuttgart, New York, 1998, Seite 457, »Polyaddition« und »Polyadditionsharze (Polyaddukte)«, sowie Seiten 463 und 464, »Polykondensate«, »Polykondensation« und »Polykondensationsharze« verwiesen.

15 Beispiele vorteilhafter erfindungsgemäßer Polyadditionsharze und/oder Polykondensationsharze sind Polyether, Polyester, Polycarbonate, Polyurethane, Polyharnstoffe, Polyamide, Polyimide oder Copolymere, die Ether -, Ester -, Carbonat -, Urethan-, Harnstoff-, Amid- und/oder Imidgruppen in den Oligomer- und/oder Polymerketten enthalten.

20

Beispiele besonders vorteilhafter erfindungsgemäßer Polyadditionsharze und/oder Polykondensationsharze sind Polyester, Polyurethane, Polyester-co-polyether, Polyester-co-polycarbonate, Polyester-co-polyurethane, Polyester-co-polyamide, Polyester-co-polyharnstoffe oder Polyester-co-polyimide.

25

Von diesen sind wiederum die Polyester, die Polyurethane und die Polyester-co-polyurethane ganz besonders vorteilhaft.

Methodisch gesehen weist deren Herstellung keine Besonderheiten auf, sondern  
30 erfolgt nach den üblichen und bekannten Methoden der Herstellung von Polykondensationsharzen und Polyadditionsharzen.

Beispielsweise sind die erfindungsgemäßen Polyester erhältlich durch Umsetzung von Polycarbonsäuren und den vorstehend beschriebenen erfindungsgemäß zu verwendenden stellungsisomeren Diethyloctandiolen sowie gegebenenfalls  
5 weiteren Polyolen und/oder Monocarbonsäuren.

Beispiele geeigneter Polycarbonsäuren sind aromatische Polycarbonsäuren wie Terephthalsäure, Isophthalsäure, Phthalsäure, Trimellithsäure oder Pyromellithsäure sowie ihre kernsubstituierten Alkylderivate; cycloaliphatische  
10 Polycarbonsäuren wie Tetrahydrophthalsäure, 1,2-Cyclobutandicarbonsäure, 1,3-Cyclobutandicarbonsäure, 1,2-Cyclopentandicarbonsäure, 1,3-Cyclopentandicarbonsäure, Hexahydrophthalsäure, 1,3-Cyclohexandicarbonsäure, 1,4-Cyclohexandicarbonsäure, 4-Methylhexahydrophthalsäure oder Tricyclodecan-Dicarbonsäure, welche sowohl in ihrer cis- als auch in ihrer trans-Form  
15 sowie als Gemisch beider Formen eingesetzt werden können; oder acyclische Polycarbonsäuren wie Oxalsäure, Malonsäure, Bernsteinsäure, Glutarsäure, Adipinsäure, Pimelinsäure, Korksäure, Azelainsäure, Sebacinsäure, Undecandicarbonsäure oder Dodecandicarbonsäure, Maleinsäure, Fumarsäure, Itaconsäure, Citraconsäure oder Dimerfettsäuren.

20 Erfindungsgemäß geeignet sind auch die veresterungsfähigen Derivate der obengenannten Polycarbonsäuren, wie z.B. deren ein- oder mehrwertige Ester mit aliphatischen Alkoholen mit 1 bis 4-C-Atomen oder Hydroxyalkoholen mit 1 bis 4 C-Atomen. Außerdem können auch die Anhydride der obengenannten  
25 Polycarbonsäuren eingesetzt werden, sofern sie existieren.

Beispiele geeigneter, gegebenenfalls angewandter Monocarbonsäuren sind 2-Ethylhexansäure, 3,3,5-Trimethylhexansäure, Isononansäure, Pelargonsäure, Fettsäuren aus Kokosefett, Fettsäuren natürlicher Öle, Harzsäuren, Benzoësäure  
30 oder p-tert.-Butylbenzoësäure.

Beispiele geeigneter Polyole, die neben den erfindungsgemäß zu verwendenden stellungsisomeren Diethyloctandiolen zu Zwecken der weiteren Variation des Eigenschaftsprofils als Ausgangsprodukte verwendet werden können, sind Diole wie Ethylenglykol, 1,2- oder 1,3-Propandiol, Methylpropan-1,3-diol, 5 Etheroligomere des Ethylenglykols und Propylenglykols wie Diethylenglykol oder Dipropylenglykol, 1,2-, 1,3- oder 1,4-Butandiol, 1,2-, 1,3-, 1,4- oder 1,5-Pentandiol, 1,2-, 1,3-, 1,4-, 1,5- oder 1,6-Hexandiol, Hydroxypivalinsäureneopentylester, Neopentylglykol, 1,2-, 1,3- oder 1,4-Cyclohexandiol, 1,2-, 1,3- oder 1,4-Cyclohexandimethanol, 10 Tricyclodecandimethanol (TCD), Trimethylpentandiol, Ethylbutylpropandiol, Octandiole, Nonandiole, 2-Butyl-2-ethylpropandiol-1,3, 2-Butyl-2-methylpropandiol-1,3, 2-Phenyl-2-methylpropan-diol-1,3, 2-Propyl-2-ethylpropandiol-1,3, 2-Di-tert.-butylpropandiol-1,3, 2-Butyl-2-propylpropandiol-1,3, 1-Dihydroxymethyl-bicyclo[2.2.1]heptan, 2,2-Diethylpropandiol-1,3, 2,2-Di- 15 propylpropandiol-1,3, 2-Cyclo-hexyl-2-methyl-propandiol-1,3, 2,5-Dimethylhexandiol-2,5, 2,5-Diethylhexandiol-2,5, 2-Ethyl-5-methylhexandiol-2,5, 2,4-Dimethylpentandiol-2,4, 2,3-Dimethylbutandiol-2,3, 1,4-(2'-Hydroxypropyl)-benzol, 1,3-(2'-Hydroxypropyl)-benzol oder Dimerdiole aus Dimerfettsäuren; oder Triole wie Glycerin, Trimethylolethan, Trimethylolpropan, 20 Trishydroxyethylisocyanurat oder Pentaerythrit.

Hierbei werden die Diole und die Triole in einem molaren Verhältnis angewandt, daß der gewünschte Verzweigungsgrad resultiert.

25 Die Herstellung der erfindungsgemäßen Polyester erfolgt nach den bekannten Methoden der Veresterung, wie sie beispielsweise in der DE-A-40 24 204, Seite 4, Zeilen 50 bis 65, beschrieben sind. Die Umsetzung erfolgt dabei üblicherweise bei Temperaturen zwischen 180 und 280°C, gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Veresterungskatalysators, wie z.B. Lithiumoctoat, Dibutylzinnoxid, 30 Dibutylzinndilaurat oder para-Toluolsulfonsäure.

Üblicherweise wird die Herstellung der erfindungsgemäßen Polyester in Gegenwart geringer Mengen eines geeigneten Lösemittels als Schleppmittel durchgeführt. Als Schleppmittel werden z. B. aromatische Kohlenwasserstoffe, wie insbesondere Xylol und (cyclo)aliphatische Kohlenwasserstoffe, z. B. 5 Cyclohexan oder Methylcyclohexan, eingesetzt.

Enthalten die erfindungsgemäßen Polyester noch mindestens eine, vorzugsweise mindestens zwei und insbesondere zwei freie Hydroxylgruppen, können sie in besonders vorteilhafter Weise der Herstellung von weiteren erfindungsgemäßen Polyester-co-polyurethanen dienen, was einen weiteren ganz besonderen Vorteil der erfindungsgemäßen Polyester darstellt.

Beispielsweise sind die erfindungsgemäßen Polyurethane nach den üblichen und bekannten Methoden der Polyurethanchemie aus Polyisocyanaten und den 15 erfindungsgemäß zu verwendenden stellungsisomeren Diethyloctandiolen sowie gegebenenfalls weiteren Verbindungen, die mindestens eine, vorzugsweise mindestens zwei gegenüber Isocyanatgruppen reaktive funktionelle Gruppen enthalten, erhältlich. Anstelle der erfindungsgemäß zu verwendenden stellungsisomeren Diethyloctandiole oder zusätzlich zu diesen werden mit 20 besonderem Vorteil auch die vorstehend beschriebenen erfindungsgemäßen Polyester verwendet, wodurch die erfindungsgemäßen Polyester-co-polyurethane resultieren.

Beispiele für geeignete Polyisocyanate sind Isophorondiisocyanat (= 5- 25 Isocyanato-1-isocyanatomethyl-1,3,3-trimethyl-cyclohexan), 5-Isocyanato-1-(2-isocyanatoethyl-1-yl)-1,3,3-trimethyl-cyclohexan, 5-Isocyanato-1-(3-isocyanatoprop-1-yl)-1,3,3-trimethyl-cyclohexan, 5-Isocyanato-(4-isocyanatobut-1-yl)-1,3,3-trimethyl-cyclohexan, 1-Isocyanato-2-(3-isocyanatoprop-1-yl)-cyclohexan, 1-Isocyanato-2-(3-isocyanatoethyl-1-yl)cyclohexan, 1-Isocyanato-2-(4-isocyanatobut-1-yl)-cyclohexan, 1,2-Diisocyanatocyclobutan, 1,3-Diisocyanatocyclobutan, 1,2-Diisocyanatocyclopentan, 1,3-

Diisocyanatocyclopentan, 1,2-Diisocyanatocyclohexan, 1,3-Diisocyanatocyclohexan, 1,4-Diisocyanatocyclohexan, Dicyclohexylmethan-2,4'-diisocyanat, flüssiges Bis(4-isocyanatocyclohexyl)methan eines trans/trans-Gehalts von bis zu 30 Gew.-%, das erhältlich ist durch Phosgenierung von  
5 Isomerengemischen des Bis(4-aminocyclohexyl)methans oder durch fraktionierte Kristallisation von handelsüblichem Bis(4-isocyanatocyclohexyl)methan, wie es in den Patentschriften DE-A-44 14 032, GB-A-1220717, DE-A-16 18 795 oder DE-A-17 93 785 beschrieben wird, Trimethylendiisocyanat, Tetramethylendiisocyanat, Pentamethylendiisocyanat, Hexamethylendiisocyanat,  
10 Ethylethylendiisocyanat, Trimethylhexandiisocyanat, Heptanmethyliendiisocyanat oder Diisocyanate, abgeleitet von Dimerfettsäuren, wie sie unter der Handelsbezeichnung DDI 1410 von der Firma Henkel vertrieben und in den Patentschriften WO 97/49745 und WO 97/49747 beschrieben werden, insbesondere 2-Heptyl-3,4-bis(9-isocyanatononyl)-1-pentyl-cyclohexan, oder 1,2-  
15 , 1,4- oder 1,3-Bis(isocyanatomethyl)cyclohexan, 1,2-, 1,4- oder 1,3-Bis(2-isocyanatoeth-1-yl)cyclohexan, 1,3-Bis(3-isocyanatoprop-1-yl)cyclohexan, 1,2-, 1,4- oder 1,3-Bis(4-isocyanatobut-1-yl)cyclohexan, Toluylendiisocyanat, Xylylendiisocyanat, Bisphenylendiisocyanat, Naphthylendiisocyanat oder Diphenylmethandiisocyanat.

20

Beispiele geeigneter gegebenenfalls als Ausgangsprodukte angewandter weiterer Verbindungen, die mindestens eine, vorzugsweise mindestens zwei gegenüber Isocyanatgruppen reaktive funktionelle Gruppen enthalten, sind

- 25 - gesättigte und ungesättigte höhermolekulare und niedermolekulare Diole und in untergeordneten Mengen Triole zur Einführung von Verzweigungen, insbesondere die vorstehend beschriebenen Diole und Triole.
- 30 - Polyamine,

- Aminolakohole und
- Verbindungen, durch welche stabilisierende (potentiell) ionische und/oder nichtionische funktionelle Gruppen eingeführt werden.

5

Weitere Beispiele gut geeigneter Verbindungen dieser Art sowie Verfahren zur Herstellung von Polyurethanen, insbesondere Polyester-co-polyurethanen, sind aus den Patentschriften EP-A-0 073 517, EP-A-0 089 497, EP-A-0 228 003, EP-A-0 234 361, EP-A-0 543 817 oder EP-A-0 574 417 bekannt.

Weitere besondere Vorteile resultieren, wenn die erfindungsgemäßen Oligomere und Polymere mit olefinisch ungesättigten Monomeren zu Pfrpfmischpolymerisaten umgesetzt werden.

15 Beispiele geeigneter olefinisch ungesättigter Monomere sind

- im wesentlichen säuregruppenfreien (Meth)acrylsäureester,
- Monomere, welche mindestens eine Hydroxylgruppe pro Molekül tragen  
20 und im wesentlichen säuregruppenfrei sind, wie Hydroxyalkylester der Acrylsäure, Methacrylsäure oder einer anderen alpha,beta-olefinisch ungesättigten Carbonsäure, die sich von einem Alkylenglykol ableiten, das mit der Säure verestert ist, oder die durch Umsetzung der alpha,beta-olefinsich ungesättigten Carbonsäure mit einem Alkylenoxid erhältlich  
25 sind,
- Monomere, welche mindestens eine Säuregruppe, die in die entsprechende Säureaniongruppe überführbar ist, pro Molekül tragen,
- 30 - Vinylester von in alpha-Stellung verzweigten Monocarbonsäuren mit 5 bis 18 Kohlenstoffatomen im Molekül,

- Umsetzungsprodukte aus Acrylsäure und/oder Methacrylsäure mit dem Glycidylester einer in alpha-Stellung verzweigten Monocarbonsäure mit 5 bis 18 C-Atomen je Molekül,
- 5 - cyclische und/oder acyclische Olefine wie Ethylen, Propylen, But-1-en, Pent-1-en, Hex-1-en, Cyclohexen, Cyclopenten, Norbonen, Butadien, Isopren, Cylopentadien und/oder Dicyclopentadien, insbesondere Ethylen,
- 10 - (Meth)Acrylsäureamide,
- Epoxidgruppen enthaltende Monomere wie die Glycidylester ethylenisch ungesättigter Carbonsäuren,
- 15 - vinylaromatische Kohlenwasserstoffe,
- Nitrile,
- Vinylverbindungen, insbesondere Vinyl- und/oder Vinylidendihalogenide,
- 20 N-Vinylpyrrolidon, Vinylester oder Vinylether,
- Allylverbindungen, insbesondere Allylether und -ester.

Weitere Beispiele für geeignete olefinisch ungesättigte Monomere sowie  
25 geeignete Methoden der Pfropfmischpolymerisation werden beispielsweise in den Patentschriften EP-A-0 521 928, EP-A-0 730 613 oder EP-A- 0 787 159 beschrieben.

Die erfindungsgemäßen Oligomeren und Polymeren können funktionelle Gruppen  
30 enthalten, die mit komplementären funktionellen Gruppen Vernetzungsreaktionen eingehen. Dabei können sich die komplementären funktionellen Gruppen in den

erfindungsgemäßen Oligomeren und Polymeren selbst befinden, wodurch diese selbstvernetzend werden. Die komplementären funktionellen Gruppen können sich indes auch in Verbindungen befinden, die getrennt von den erfindungsgemäßen Oligomeren und Polymeren vorliegen. Von der Fachwelt werden derartige Gemische als fremdvernetzende Systeme und die betreffenden Verbindungen als Vernetzungsmittel bezeichnet. In diesen fremdvernetzenden Systemen übernehmen die erfindungsgemäßen Oligomeren und Polymeren die Funktion der Bindemittel.

Beispiele für erfindungsgemäße Verbindungen, die zu verwendender komplementärer funktioneller Gruppen, welche Vernetzungsreaktionen eingehen, sind in der folgenden Übersicht zusammengestellt. In der Übersicht steht die Variable R für einen acyclischen oder cyclischen aliphatischen, einen aromatischen und/oder einen aromatisch-aliphatischen (araliphatischen) Rest; die Variablen R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> stehen für gleiche oder verschiedene aliphatische Reste oder sind miteinander zu einem aliphatischen oder heteroaliphatischen Ring verknüpft.

Übersicht: Beispiele komplementärer funktioneller Gruppen im

Bindemittel (selbstvernetzend)

<u>Bindemittel</u>	und	<u>Vernetzungsmittel</u>
	oder	
<u>Vernetzungsmittel</u>	und	<u>Bindemittel</u>

-SH

-C(O)-OH

30 -NH<sub>2</sub>

-C(O)-O-C(O)-



15

 $-\text{OH}$  $-\text{NCO}$  $-\text{O}-(\text{CO})-\text{NH}-(\text{CO})-\text{NH}_2$  $-\text{NH}-\text{C}(\text{O})-\text{OR}$ 5  $-\text{O}-(\text{CO})-\text{NH}_2$  $-\text{CH}_2-\text{OH}$  $-\text{CH}_2-\text{O}-\text{CH}_3$  $-\text{NH}-\text{C}(\text{O})-\text{CH}(-\text{C}(\text{O})\text{OR})_2$ 

10

 $-\text{NH}-\text{C}(\text{O})-\text{CH}(-\text{C}(\text{O})\text{OR})(-\text{C}(\text{O})-\text{R})$  $-\text{NH}-\text{C}(\text{O})-\text{NR}^1\text{R}^2$ 

15

 $=\text{Si}(\text{OR})_2$  $\text{O}$  $-\text{CH}-\text{CH}_2$ 

20

 $-\text{C}(\text{O})-\text{OH}$  $\text{O}$  $-\text{CH}-\text{CH}_2$ 

25

 $-\text{O}-\text{C}(\text{O})-\text{CR}=\text{CH}_2$  $-\text{OH}$  $-\text{O}-\text{CR}=\text{CH}_2$  $-\text{NH}_2$ 

30

 $-\text{C}(\text{O})-\text{CH}_2-\text{C}(\text{O})-\text{R}$  $-\text{CH}=\text{CH}_2$

Anstelle dieser komplementären funktionellen Gruppen oder zusätzlich zu diesen  
5 können die erfindungsgemäßen Oligomere und Polymere funktionelle Gruppen  
enthalten, die bei der Einwirkung von aktinischer Strahlung miteinander oder mit  
anderen Gruppen reagieren. Beispiele geeigneter Gruppen dieser Art sind die  
vorstehend aufgeführten Allyl- und Vinylgruppen. Weitere Beispiele geeigneter  
Gruppen sind Acrylat- und Methacrylatgruppen, insbesondere Acrylatgruppen.

~~Die erfindungsgemäßen Oligomere und Polymere eignen sich zur Verfestigung durch Bestrahlung mit~~

Röntgenstrahlung, UV-Strahlung, sichtbares Licht oder nahes IR-Licht (NIR) oder  
um Korpuskularstrahlung wie Elektronenstrahlen handeln.

Die vorstehend beschriebenen erfindungsgemäßen Oligomere und Polymere  
15 eignen sich hervorragend für die Herstellung von Formmassen, Klebstoffen und  
Beschichtungsstoffen, insbesondere Lacken.

Für die Herstellung der erfindungsgemäßen Formmassen können  
erfindungsgemäße flüssige oder feste Oligomere und Polymere verwendet  
20 werden, die die vorstehend beschriebenen funktionellen Gruppen enthalten, so  
daß sie in üblicher und bekannter Weise durch Erhitzen und/oder durch  
Bestrahlen mit aktinischer Strahlung zu duroplastischen erfindungsgemäßen  
Formteilen, Folien und Fasern verarbeitet werden können. Indes werden  
vorteilhafterweise feste erfindungsgemäße Oligomere und Polymere verwendet,  
25 die thermoplastische Eigenschaften haben und keine reaktiven funktionellen  
Gruppen mehr aufweisen, so daß sie in üblicher und bekannter Weise  
beispielsweise durch Extrusion gefolgt von Spritzgießen, Folienblasen oder dem  
Ziehen von Fasern zur thermoplastischen erfindungsgemäßen Formteilen, Folien  
und Fasern verarbeitet werden können.

Die erfindungsgemäßen Formteile, Folien und Fasern lassen sich in hervorragender Weise mit den erfindungsgemäßen Klebstoffen verkleben und/oder mit den erfindungsgemäßen Beschichtungsstoffen beschichten bzw. lackieren.

5

Die erfindungsgemäßen Formmassen bestehen aus den erfindungsgemäßen Oligomeren und Polymeren oder sie enthalten übliche und bekannte Kunststoffadditive in wirksamen Mengen.

10 Für die Herstellung von erfindungsgemäßen Klebstoffen, die als Kontaktkleber dienen, werden vorzugsweise erfindungsgemäße Oligomere und Polymere verwendet, die keine oder nur eine sehr geringe Menge der vorstehend beschriebenen funktionellen Gruppen enthalten.

15 Für die Herstellung von erfindungsgemäßen Klebstoffen, die als Reaktivkleber dienen, werden vorzugsweise erfindungsgemäße Oligomere und Polymere verwendet, die über eine größere Menge der vorstehend beschriebenen funktionellen Gruppen verfügen, so daß sie thermisch und/oder mit aktinischer Strahlung gehärtet werden können. Darüber hinaus können die  
20 erfindungsgemäßen Klebstoffe die nachstehend bei den Beschichtungsstoffen beschriebenen Additive enthalten, sofern diese für die Verwendung in Klebstoffen in Betracht kommen.

Mit Hilfe der erfindungsgemäßen Klebstoffe lassen sich die nachstehend  
25 beschriebenen Substrate, insbesondere die erfindungsgemäßen Formteile, Folien und Fasern, in hervorragender Weise verkleben.

Ganz besonders bevorzugt werden die erfindungsgemäßen Oligomere und Polymere für die Herstellung von Beschichtungsstoffen, insbesondere von  
30 Lacken, verwendet. Für diesen Verwendungszweck werden vorzugsweise Oligomere und Polymere verwendet, die die vorstehend beschriebenen

funktionellen Gruppen enthalten. Hierbei sind die erfindungsgemäßen Beschichtungsstoffe im vorstehend genannten Sinne selbstvernetzend oder fremdvernetzend, insbesondere aber fremdvernetzend. Des weiteren sind sie thermisch oder mit aktinischer Strahlung oder thermisch und mit aktinischer Strahlung härtbar, welch letzteres von der Fachwelt auch als Dual Cure bezeichnet wird.

Die Auswahl der jeweiligen komplementären funktionellen Gruppen richtet sich zum einen danach, daß sie bei der Lagerung keine unerwünschten Reaktionen ~~einsetzen, die für und/oder gegebenenfalls die Härtung mit aktinischer Strahlung~~ nicht stören oder inhibieren, und zum anderen danach, in welchem Temperaturbereich die thermische Härtung erfolgen soll.

Hierbei ist es, insbesondere im Hinblick auf thermisch sensible Substrate wie Kunststoffe, erfindungsgemäß von Vorteil, einen Temperaturbereich zu wählen, welcher 100 °C, insbesondere 80 °C nicht überschreitet. Im Hinblick auf diese Rahmenbedingungen haben sich Hydroxylgruppen und Isocyanatgruppen oder Carboxylgruppen und Epoxygruppen als komplementäre funktionelle Gruppen als vorteilhaft erwiesen, weswegen sie in den erfindungsgemäßen Beschichtungsstoffen, welche als Zwei- oder Mehrkomponentensysteme vorliegen, erfindungsgemäß bevorzugt angewandt werden. Besondere Vorteile resultieren, wenn die Hydroxylgruppen als funktionelle Gruppen in den Bindemitteln und die Isocyanatgruppen als funktionelle Gruppen in den Vernetzungsmitteln verwendet werden.

Können höhere Vernetzungstemperaturen, beispielsweise von 100 °C bis 180 °C, angewandt werden, kommen als erfindungsgemäße Beschichtungsstoffe auch Einkomponentensysteme in Betracht, worin die funktionellen Gruppen in den Bindemitteln vorzugsweise Thio-, Amino-, Hydroxyl-, Carbamat-, Allophanat-, Carboxy-, und/oder (Meth)acrylatgruppen, insbesondere aber Hydroxylgruppen, und die funktionellen Gruppen in den Vernetzungsmitteln vorzugsweise Anhydrid-

, Carboxy-, Epoxy-, blockierte Isocyanat-, Urethan-, Methylol-, Methylolether-, Siloxan-, Amino-, Hydroxy- und/oder beta-Hydroxyalkylamidgruppen sind.

Im Rahmen der vorliegenden Erfindung ist unter einem Einkomponenten(1K)-  
5 System ein thermisch härtender Beschichtungsstoff zu verstehen, bei dem das Bindemittel und das Vernetzungsmittel nebeneinander, d.h. in einer Komponente, vorliegen. Voraussetzung hierfür ist, daß die beiden Bestandteile erst bei höheren Temperaturen und/oder bei Bestrahlen mit aktinischer Strahlung miteinander vernetzen.

10

Der erfindungsgemäße Beschichtungsstoff kann des weiteren ein Zweikomponenten(2K)- oder Mehrkomponenten(3K, 4K)-System sein.

Im Rahmen der vorliegenden Erfindung ist hierunter ein Beschichtungsstoff zu  
15 verstehen, bei dem insbesondere das Bindemittel und das Vernetzungsmittel getrennt voneinander in mindestens zwei Komponenten vorliegen, die erst kurz vor der Applikation zusammengegeben werden. Diese Form wird dann gewählt, wenn Bindemittel und Vernetzungsmittel bereits bei Raumtemperatur miteinander reagieren. Beschichtungsstoffe dieser Art werden vor allem zur  
20 Beschichtung thermisch empfindlicher Substrate, insbesondere in der Autoreparaturlackierung, angewandt.

Nicht zuletzt können die erfindungsgemäßen Beschichtungsstoffe physikalisch härtend sein, d. h., durch Lösemittelabgabe aus den applizierten  
25 Beschichtungsstoffen und/oder durch Koaleszenz der Bindemittelteilchen vernetzen. Die Verknüpfung innerhalb der Lackierungen erfolgt durch Verschlaufen der Polymerketten der Bindemittel. Ergänzend wird auf Römpf Lexikon Lacke und Druckfarben, Georg Thieme Verlag, Stuttgart, New York, 1998, Seiten 274 und 275, »Härtung«, verwiesen.

30

Der erfindungsgemäße Beschichtungsstoff wird zur Herstellung dekorativer und/oder schützender Beschichtungen, insbesondere Lackierungen wie transparente Klarlackierungen, Grundierungen, insbesondere Steinschlagschutzgrundierungen und Füller, oder farb- und/oder effektgebende Lackierungen, insbesondere Decklackierungen und Basislackierungen, verwendet. Dabei können die Lackierungen ein- oder mehrschichtig sein.

Zu diesen Verwendungszwecken werden dem erfindungsgemäßen Beschichtungsstoff im allgemeinen lackübliche Additive in wirksamen Mengen

~~in wirksamen Mengen, die sich vor allem nach dem~~  
Verwendungszweck des erfindungsgemäßen Beschichtungsstoffs. Vorzugsweise sind diese Additive unter den Verarbeitungs- und Applikationsbedingungen des erfindungsgemäßen Beschichtungsstoffs nicht flüchtig.

15 Wird der erfindungsgemäße Beschichtungsstoffe als Decklack oder Basislack verwendet, enthält er farb- und/oder effektgebende Pigmente in üblichen und bekannten Mengen. Die Pigmente können aus anorganischen oder organischen Verbindungen bestehen und können effekt- und/oder farbgebend sein. Der erfindungsgemäße Beschichtungsstoff gewährleistet daher aufgrund dieser  
20 Vielzahl geeigneter Pigmente eine universelle Einsatzbreite der Beschichtungsstoffe und ermöglicht die Realisierung einer Vielzahl von Farbtönen und optischer Effekte.

Desweiteren kann der erfindungsgemäße Beschichtungsstoff organische und  
25 anorganische Füllstoffe in üblichen und bekannten, wirksamen Mengen enthalten. Beispiele für geeignete Füllstoffe sind Kreide, Calciumsulfate, Bariumsulfat, Silikate wie Talk oder Kaolin, Kieselsäuren, Oxide wie Aluminiumhydroxid oder Magnesiumhydroxid oder organische Füllstoffe wie Textilfasern, Cellulosefasern, Polyethylenfasern oder Holzmehl.

Diese Additive entfallen, wenn die erfindungsgemäßen Beschichtungsstoffe als Klarlacke verwendet werden.

Beispiele geeigneter Additive, welche sowohl in den erfindungsgemäßen  
5 Klarlacken und Decklacken vorhanden sein können, sind

- übliche und bekannte oligomere und polymere Bindemittel wie thermisch  
härtbare hydroxylgruppenhaltige lineare und/oder verzweigte und/oder  
blockartig, kammartig und/oder statistisch aufgebaute Poly(meth)acrylate  
10 oder Acrylatcopolymerisate, Polyester, Alkyde, Aminoplastharze,  
Polyurethane, acrylierte Polyurethane, acrylierte Polyester, Polylactone,  
Polycarbonate, Polyether, Epoxidharz-Amin-Addukte, (Meth)Acrylatdiole,  
partiell verseifte Polyvinylester oder Polyharnstoffe oder mit aktinischer  
Strahlung härtbare (meth)acrylfunktionelle (Meth)Acrylatcopolymere,  
15 Polyetheracrylate, Polyesteracrylate, ungesättigte Polyester, Epoxyacryla-  
te, Urethanacrylate, Aminoacrylate, Melaminacrylate, Silikonacrylate und  
die entsprechenden Methacrylate;
- übliche und bekannte thermisch und/oder mit aktinischer Strahlung  
20 härtbare Reaktiverdünner wie die erfindungsgemäß zu verwendenden  
Diethyloctandiole als solche, di- oder höherfunktionelle (Meth)Acrylate  
oder (Meth)Acrylatgruppen enthaltende Polyisocyanate;
- UV-Absorber und Lichtschutzmittel wie Benztriazole, Triazine oder  
25 Oxalanilide;
- Radikalfänger wie HALS-Verbindungen;
- thermolabile radikalische Initiatoren wie organische Peroxide, organische  
30 Azoverbindungen oder C-C-spaltende Initiatoren wie Dialkylperoxide,

Peroxocarbonsäuren, Peroxodicarbonate, Peroxidester, Hydroperoxide, Ketonperoxide, Azodinitrile oder Benzpinakolsilylether;

- 5 - Katalysatoren für die Vernetzung wie Dibutylzinndilaurat oder Lithiumdecanoat;
- Photoinitiatoren wie solche vom Norrish II-Typ, deren Wirkungsmechanismus auf einer intramolekularen Variante der Wasserstoff-Abstraktionsreaktionen beruht, wie sie in vielfältiger Weise bei photochemischen Reaktionen auftreten (beispielhaft sei hier auf Römpp Chemie Lexikon, 9. erweiterte und neubearbeitete Auflage, Georg Thieme Verlag Stuttgart, Bd. 4, 1991, verwiesen) oder kationische Photoinitiatoren (beispielhaft sei hier auf Römpp Lexikon Lacke und Druckfarben, Georg Thieme Verlag Stuttgart, 1998, Seiten 444 bis 446, 15 verwiesen), insbesondere Benzophenone, Benzoine oder Benzoinether oder Phosphinoxide;
- Slipadditive;
- 20 - Polymerisationsinhibitoren wie Phosphite;
- Entschäumer;
- Emulgatoren, insbesondere nicht ionische Emulgatoren wie alkoxylierte 25 Alkanole und Polyole, Phenole und Alkylphenole oder anionische Emulgatoren wie Alkalisalze oder Ammoniumsalze von Alkancarbonsäuren, Alkansulfonsäuren, und Sulfosäuren von alkoxylierten Alkanolen, Polyolen, Phenolen und Alkylphenolen;



- Netzmittel wie Siloxane, fluorhaltige Verbindungen, Carbonsäurehalbester, Phosphorsäureester, Polyacrylsäuren und deren Copolymere oder Polyurethane;
- 5 - Haftvermittler wie Tricyclodecandimethanol;
- Verlaufsmittel;
- hochsiedende organische Lösemittel („lange Lösemittel“);
- 10 - filmbildende Hilfsmittel wie Cellulose-Derivate;
- transparente Füllstoffe auf der Basis von Siliziumdioxid, Aluminiumoxid oder Zirkoniumoxid; ergänzend wird noch auf das Römpf Lexikon Lacke und Druckfarben, Georg Thieme Verlag, Stuttgart, 1998, Seiten 250 bis
- 15 252, verwiesen;
- Sag control agents wie Harnstoffe, modifizierte Harnstoffe und/oder Kieselsäuren, wie sie beispielsweise in den Literaturstellen EP-A-192 304,
- 20 DE-A-23 59 923, DE-A-18 05 693, WO 94/22968, DE-C-27 51 761, WO 97/12945 oder "farbe + lack", 11/1992, Seiten 829 ff., beschrieben werden;
- Rheologiesteuender Additive wie die aus den Patentschriften WO 94/22968, EP-A-0 276 501, EP-A-0 249 201 oder WO 97/12945
- 25 bekannten; vernetzte polymere Mikroteilchen, wie sie beispielsweise in der EP-A-0 008 127 offenbart sind; anorganische Schichtsilikate wie Aluminium-Magnesium-Silikate, Natrium-Magnesium- und Natrium-Magnesium-Fluor-Lithium-Schichtsilikate des Montmorillonit-Typs; Kieselsäuren wie Aerosile; oder synthetische
- 30 Polymere mit ionischen und/oder assoziativ wirkenden Gruppen wie Polyvinylalkohol, Poly(meth)acrylamid, Poly(meth)acrylsäure,

Polyvinylpyrrolidon, Styrol-Maleinsäureanhydrid- oder  
Ethylen-Maleinsäureanhydrid-Copolymere und ihre Derivate oder  
hydrophob modifizierte ethoxylierte Urethane oder Polyacrylate;

- 5 - Flammenschutzmittel und/oder
- Mattierungsmittel.

Weitere Beispiele geeigneter Lackadditive werden in dem Lehrbuch  
"Lack-Technologie" von H. VCH, Weinheim, New York, 1998

beschrieben.

Diese Additive werden den erfindungsgemäßen Beschichtungsstoffen in üblichen  
und bekannten, wirksamen Mengen zugesetzt.

15

Die stoffliche Zusammensetzung der erfindungsgemäßen Beschichtungsstoffe  
kann je nach ihrem Verwendungszweck außerordentlich breit variieren, was ein  
weiterer wesentlicher Vorteil der Beschichtungsstoffe ist. Im allgemeinen  
empfiehlt es sich, die vom Stand der Technik her bekannten Mengen an

- 20 Bindemitteln, Vernetzungsmitteln und Additiven anzuwenden. Von Vorteil sind  
hierbei erfindungsgemäße Beschichtungsstoffe, die

- 1 bis 90 Gew.-%, bevorzugt 2 bis 80 Gew.-%, besonders bevorzugt 3 bis  
75 Gew.-% und insbesondere 4 bis 70 Gew.-% mindestens eines  
25 erfindungsgemäßen Oligomeren und Polymeren,

- 0 bis 60 Gew.-%, bevorzugt 1 bis 50 Gew.-%, besonders bevorzugt 2 bis  
45 Gew.-% und insbesondere 4 bis 40 Gew.-% mindestens eines  
Vernetzungsmittels sowie

30

- 0 bis 90 Gew.-%, bevorzugt 0,1 bis 80 Gew.-%, besonders bevorzugt 0,5 bis 75 Gew.-% und insbesondere 1 bis 70 Gew.-% mindestens eines Additivs,

5 wobei sich die Prozentangaben auf den Festkörpergehalt des betreffenden erfindungsgemäßen Beschichtungsstoffs beziehen und sich zu 100 Gew.-% addieren.

Der Beschichtungsstoff kann in unterschiedlichen Formen vorliegen.

10

So kann er bei entsprechender Wahl seiner vorstehend beschriebenen Bestandteile als flüssiger Beschichtungsstoff vorliegen, welcher im wesentlichen frei von organischen Lösemitteln und/oder Wasser ist (100%-System).

15 Indes kann es sich bei dem Beschichtungsstoff um eine Lösung oder Dispersion der vorstehend beschriebenen Bestandteile in organischen Lösemitteln und/oder Wasser handeln. Es ist ein weiterer Vorteil des Beschichtungsstoffs, daß hierbei Feststoffgehalte bis zu mehr als 80 Gew.-%, bezogen auf den Beschichtungsstoff, eingestellt werden können.

20

Des weiteren kann der Beschichtungsstoff bei entsprechender Wahl seiner vorstehend beschriebenen Bestandteile ein Pulverlack sein. Zu diesem Zweck kann das Vernetzungsmittel mikroverkapselt sein, wenn es sich um ein Polyisocyanat handelt. Dieser Pulverlack kann dann gegebenenfalls in Wasser

25 dispergiert werden, wodurch ein Pulverslurry-Lack resultiert.

Der Beschichtungsstoff kann des weiteren ein vorstehend beschriebenes Zwei- oder Mehrkomponentensystem sein, bei dem zumindest das Vernetzungsmittel getrennt von den übrigen Bestandteilen gelagert und erst kurz vor der

30 Verwendung zu diesen hinzugegeben wird. In diesem Falle kann der erfindungsgemäße Beschichtungsstoff auch wäßrig sein, wobei das

Vernetzungsmittel vorzugsweise in einer ein Lösemittel enthaltenden Komponente vorliegt.

Des weiteren kann der Beschichtungsstoff Bestandteil eines sogenannten  
5 Mischsystems oder Modulsystems sein, wie sie beispielsweise in den Patentschriften DE-A-41 10 520, EP-A-0 608 773, EP-A-0 614 951 oder EP-A-0 471 972 beschrieben werden.

Die Herstellung des Beschichtungsstoffs aus seinen Bestandteilen weist keine  
~~Erfindungsgemäße Herstellung auf, sondern erfolgt in üblicher und bekannter Weise durch~~  
Vermischen der Bestandteile in geeigneten Mischaggregaten wie Rührkessel,  
Dissolver oder Extruder nach den für die Herstellung der jeweiligen  
Beschichtungsstoffe geeigneten Verfahren.

15 Der erfindungsgemäße Beschichtungsstoff dient der Herstellung der erfindungsgemäßen Lackierungen, insbesondere Mehrschichtlackierungen ML, auf grundierten oder ungrundierten Substraten.

Als Substrate kommen alle zu lackierenden Oberflächen, die durch eine Härtung  
20 der hierauf befindlichen Lackierungen unter Anwendung von Hitze und/oder aktinischer Strahlung nicht geschädigt werden, in Betracht, das sind z. B. die erfindungsgemäßen Formteile, Folien und Fasern, Metalle, Kunststoffe, Holz, Keramik, Stein, Textil, Faserverbunde, Leder, Glas, Glasfasern, Glas- und Steinwolle, mineral- und harzgebundene Baustoffe, wie Gips- und Zementplatten  
25 oder Dachziegel, sowie Verbunde dieser Materialien. Demnach ist die erfindungsgemäße Mehrschichtlackierung auch für Anwendungen außerhalb der Kfz-Lackierung, insbesondere Automobillackierung geeignet. Hierbei kommt sie insbesondere für die Lackierung von Möbeln und die industrielle Lackierung, inklusive Coil Coating und Container Coating, in Betracht. Im Rahmen der  
30 industriellen Lackierungen eignet sie sich für die Lackierung praktisch aller Teile für den privaten oder industriellen Gebrauch wie Radiatoren, Haushaltsgeräte,

Kleinteile aus Metall wie Schrauben und Muttern, Radkappen, Felgen, Emballagen oder elektrotechnische Bauteile wie Motorwicklungen oder Transformatorwicklungen.

- 5 Im Falle elektrisch leitfähiger Substrate können Grundierungen verwendet werden, die in üblicher und bekannter Weise aus Elektrotauchlacken (ETL) hergestellt werden. Hierfür kommen sowohl anodische (ATL) als auch kathodische (KTL) Elektrotauchlacke, insbesondere aber KTL, in Betracht.
- 10 Mit der erfindungsgemäßen Mehrschichtlackierung können insbesondere auch grundierte oder nicht grundierte Kunststoffe wie z. B. ABS, AMMA, ASA, CA, CAB, EP, UF, CF, MF, MPF, PF, PAN, PA, PE, HDPE, LDPE, LLDPE, UHMWPE, PET, PMMA, PP, PS, SB, PUR, PVC, RF, SAN, PBT, PPE, POM, PUR-RIM, SMC, BMC, PP-EPDM und UP (Kurzbezeichnungen nach DIN
- 15 7728T1) lackiert werden. Die zu lackierenden Kunststoffe können selbstverständlich auch Polymerblends, modifizierte Kunststoffe oder faserverstärkte Kunststoffe sein. Es können auch die üblicherweise im Fahrzeugbau, insbesondere Kraftfahrzeugbau, eingesetzten Kunststoffe zum Einsatz kommen.
- 20 Im Falle von nichtfunktionalisierten und/oder unpolaren Substratoberflächen können diese vor der Beschichtung in bekannter Weise einer Vorbehandlung, wie mit einem Plasma oder mit Beflammen, unterzogen oder mit einer Hydrogrundierung versehen werden.
- 25 Die erfindungsgemäßen Mehrschichtlackierungen ML können in unterschiedlicher Weise hergestellt werden.

In einer ersten bevorzugten Variante umfaßt das erfindungsgemäße Verfahren die folgenden Verfahrensschritte:

- (I) Herstellen einer Füllerlackschicht durch Applikation eines Füllers auf das Substrat,
- (II) Härtung der Füllerlackschicht, wodurch die Füllerschicht resultiert,
- 5 (III) Herstellen einer Unidecklackschicht durch Applikation eines Unidecklacks auf die Füllerschicht und
- (IV) Härtung der Unidecklackschicht, wodurch die Unidecklackierung

Eine weitere bevorzugte Variante des erfindungsgemäßen Verfahrens umfaßt die Verfahrensschritte:

- 15 (I) Herstellen einer Basislackschicht durch Applikation eines Basislacks auf das Substrat,
- (II) Trocknen der Basislackschicht,
- 20 (III) Herstellen einer Klarlackschicht durch Applikation eines Klarlacks auf die Basislackschicht und
- (IV) gemeinsame Härtung der Basislackschicht und der Klarlackschicht, wodurch die Basislackierung und die Klarlackierung resultieren (Naß-in-naß-Verfahren).
- 25

Eine dritte bevorzugte Variante des erfindungsgemäßen Verfahrens umfaßt die Verfahrensschritte:

- 30 (I) Herstellen einer Füllerlackschicht durch Applikation eines Füllers auf das Substrat,

- (II) Härtung der Füllerslacksschicht, wodurch die Füllerschicht resultiert.
- (III) Herstellen einer Basislacksschicht durch Applikation eines Basislacks auf  
5 die Füllerschicht,
- (IV) Trocknen der Basislacksschicht.
- (V) Herstellen einer Klarlacksschicht durch Applikation eines Klarlacks auf die  
10 Basislacksschicht und
- (VI) gemeinsame Härtung der Basislacksschicht und der Klarlacksschicht,  
wodurch die Basislackierung und die Klarlackierung resultieren (Naß-in-  
naß-Verfahren).

15

Welche bevorzugte Variante gewählt wird, richtet sich nach dem Verwendungszweck der erfindungsgemäßen Mehrschichtlackierungen ML. So wird insbesondere die dritte Variante bei der Automobilserienlackierung besonders bevorzugt angewandt.

20

Demzufolge können die erfindungsgemäßen Mehrschichtlackierungen ML einen unterschiedlichen Aufbau aufweisen.

In einer ersten bevorzugten Variante der erfindungsgemäßen  
25 Mehrschichtlackierung ML liegen

- (1) eine mechanische Energie absorbierende Füllerschicht und
- (2) eine farb- und/oder effektgebende Decklackierung  
30 in der angegebenen Reihenfolge übereinander.

In einer zweiten bevorzugten Variante der erfindungsgemäßen Mehrschichtlackierung ML liegen

- 5 (1) eine mechanische Energie absorbierende Füllerschicht,
- (2) eine farb- und/oder effektgebende Basislackierung und
- (3) eine Klarlackierung

in der angegebenen Reihenfolge übereinander.

In einer dritten bevorzugten Variante der erfindungsgemäßen Mehrschichtlackierung ML liegen

15

- (1) eine farb- und/oder effektgebende Basislackierung und
- (2) eine Klarlackierung

- 20 in der angegebenen Reihenfolge übereinander. Die dritte bevorzugte Variante wird insbesondere bei der Kunststofflackierung angewandt.

Die Applikation des erfindungsgemäßen Beschichtungsstoffs kann durch alle üblichen Applikationsmethoden, wie z.B. Spritzen, Rakeln, Streichen, Gießen,  
25 Tauchen, Tränken, Träufeln oder Walzen erfolgen. Dabei kann das zu beschichtende Substrat als solches ruhen, wobei die Applikationseinrichtung oder -anlage bewegt wird. Indes kann auch das zu beschichtende Substrat, insbesondere ein Coil, bewegt werden, wobei die Applikationsanlage relativ zum Substrat ruht oder in geeigneter Weise bewegt wird.



Vorzugsweise werden Spritzapplikationsmethoden angewandt, wie zum Beispiel Druckluftspritzen, Airless-Spritzen, Hochrotation, elektrostatischer Sprühauftrag (ESTA), gegebenenfalls verbunden mit Heißspritzapplikation wie zum Beispiel Hot-Air – Heißspritzen. Die Applikationen kann bei Temperaturen von max. 70  
5 bis 80 °C durchgeführt werden, so daß geeignete Applikationsviskositäten erreicht werden, ohne daß bei der kurzzeitig einwirkenden thermischen Belastung eine Veränderung oder Schädigungen des Beschichtungsstoffs und seines gegebenenfalls wiederaufzubereitenden Overspray eintreten. So kann das Heißspritzen so ausgestaltet sein, daß der Beschichtungsstoff nur sehr kurz in der  
10 oder kurz vor der Spritzdüse erhitzt wird.

Die für die Applikation verwendete Spritzkabine kann beispielsweise mit einem gegebenenfalls temperierbaren Umlauf betrieben werden, der mit einem geeigneten Absorptionsmedium für den Overspray, z. B. dem Beschichtungsstoff  
15 selbst, betrieben wird.

Sofern der Beschichtungsstoff Bestandteile enthält, die mit aktinischer Strahlung vernetzbar sind, wird die Applikation bei Beleuchtung mit sichtbarem Licht einer Wellenlänge von über 550 nm oder unter Lichtausschluß durchgeführt. Hierdurch  
20 werden eine stoffliche Änderung oder Schädigung des Beschichtungsstoffs und des Overspray vermieden.

Im allgemeinen werden die Füllerlackschicht, Decklackschicht, Basislackschicht und Klarlackschicht in einer Naßschichtdicke appliziert, daß nach ihrer  
25 Aushärtung Schichten mit der für ihre Funktionen notwendigen und vorteilhaften Schichtdicken resultieren. Im Falle der Füllerschicht liegt diese Schichtdicke bei 10 bis 150, vorzugsweise 15 bis 120, besonders bevorzugt 20 bis 100 und insbesondere 25 bis 90 µm, im Falle der Decklackierung liegt sie bei 5 bis 90, vorzugsweise 10 bis 80, besonders bevorzugt 15 bis 60 und insbesondere 20 bis  
30 50 µm, im Falle der Basislackierung liegt sie bei 5 bis 50, vorzugsweise 10 bis 40, besonders bevorzugt 12 bis 30 und insbesondere 15 bis 25 µm, und im Falle der

Klarlackierungen liegt sie bei 10 bis 100, vorzugsweise 15 bis 80, besonders bevorzugt 20 bis 70 und insbesondere 25 bis 60  $\mu\text{m}$ .

Erfindungsgemäß können die Füllerlackschicht, Decklackschicht, Basislackschicht und Klarlackschicht je nach ihrer stofflichen Zusammensetzung thermisch, mit aktinischer Strahlung oder thermisch und mit aktinischer Strahlung ausgehärtet werden. Erfindungsgemäß ist es von Vorteil die Basislackschicht vor der Applikation der Klarlackschicht gar nicht oder nur partiell auszuhärten, um sie anschließend gemeinsam mit der Klarlackschicht auszuhärten (Naß-in-naß-

Die Aushärtung kann nach einer gewissen Ruhezeit erfolgen. Sie kann eine Dauer von 30 s bis 2 h, vorzugsweise 1 min bis 1 h und insbesondere 1 min bis 30 min haben. Die Ruhezeit dient beispielsweise zum Verlauf und zur Entgasung der Lackschichten oder zum Verdunsten von flüchtigen Bestandteilen wie Lösemittel, Wasser oder Kohlendioxid, wenn der Beschichtungsstoff mit überkritischem Kohlendioxid als Lösemittel appliziert worden ist. Die Ruhezeit kann durch die Anwendung erhöhter Temperaturen bis 80 °C unterstützt und/oder verkürzt werden, sofern hierbei keine Schädigungen oder Veränderungen der Lackschichten eintreten, etwa eine vorzeitige vollständige Vernetzung.

Die thermische Härtung weist keine methodischen Besonderheiten auf, sondern erfolgt nach den üblichen und bekannten Methoden wie Erhitzen in einem Umluftofen oder Bestrahlen mit IR-Lampen. Hierbei kann die thermische Härtung auch stufenweise erfolgen. Vorteilhafterweise erfolgt die thermische Härtung bei einer Temperatur von 50 bis 100 °C, besonders bevorzugt 80 bis 100 °C und insbesondere 90 bis 100 °C während einer Zeit von 1 min bis zu 2 h, besonders bevorzugt 2 min bis zu 1 h und insbesondere 3 min bis 30 min. Werden Substrate verwendet, welche thermisch stark belastbar sind, kann die thermische Vernetzung auch bei Temperaturen oberhalb 100 °C durchgeführt

werden. Im allgemeinen empfiehlt es sich, hierbei Temperaturen von 180 °C, vorzugsweise 160 °C und insbesondere 140 °C nicht zu überschreiten.

Die thermische Härtung kann bei entsprechender stofflicher Zusammensetzung  
5 des Beschichtungsstoffs durch die Härtung mit aktinischer Strahlung ergänzt werden, wobei insbesondere UV-Strahlung und/oder Elektronenstrahlen verwendet werden können. Gegebenenfalls kann sie mit aktinischer Strahlung von anderen Strahlenquellen durchgeführt oder ergänzt werden. Im Falle von Elektronenstrahlen wird vorzugsweise unter Inertgasatmosphäre gearbeitet. Dies  
10 kann beispielsweise durch Zuführen von Kohlendioxid und/oder Stickstoff direkt an die Oberfläche der Lackschicht gewährleistet werden.

Auch im Falle der Härtung mit UV-Strahlung kann, um die Bildung von Ozon zu vermeiden, unter Inertgas gearbeitet werden.

15

Für die Härtung mit aktinischer Strahlung werden die üblichen und bekannten Strahlenquellen und optischen Hilfsmaßnahmen angewandt. Beispiele geeigneter Strahlenquellen sind Quecksilberhoch- oder -niederdruckdampflampen, welche gegebenenfalls mit Blei dotiert sind, um ein Strahlenfenster bis zu 405 nm zu  
20 öffnen, oder Elektronenstrahlquellen. Deren Anordnung ist im Prinzip bekannt und kann den Gegebenheiten des Werkstücks und der Verfahrensparameter angepaßt werden. Bei kompliziert geformten Werkstücken wie Automobilkarosserien können die nicht direkter Strahlung zugänglichen Bereiche (Schattenbereiche) wie Hohlräume, Falzen und anderen konstruktionsbedingte  
25 Hinterschneidungen mit Punkt-, Kleinflächen- oder Rundumstrahlern verbunden mit einer automatischen Bewegungseinrichtung für das Bestrahlen von Hohlräumen oder Kanten ausgehärtet werden.

Die Anlagen und Bedingungen dieser Härtungsmethoden werden beispielsweise  
30 in R. Holmes, »U.V. and E.B. Curing Formulations for Printing Inks«, Coatings

and Paints, SITA Technology, Academic Press, London, United Kindom 1984, beschrieben.

Hierbei kann die Aushärtung stufenweise erfolgen, d. h. durch mehrfache  
5 Belichtung oder Bestrahlung mit aktinischer Strahlung. Dies kann auch  
alternierend erfolgen, d. h., daß abwechselnd mit UV-Strahlung und  
Elektronenstrahlung gehärtet wird.

Werden die thermische Härtung und Härtung mit aktinischer Strahlung zusammen  
~~eingesetzt werden. Werden die beiden Härtungsmethoden gleichzeitig oder alternierend~~  
eingesetzt werden. Werden die beiden Härtungsmethoden alternierend verwendet,  
kann beispielsweise mit der thermischen Härtung begonnen und mit der Härtung  
mit aktinischer Strahlung geendet werden. In anderen Fällen kann es sich als  
vorteilhaft erweisen, mit der Härtung mit aktinischer Strahlung zu beginnen und  
15 hiermit zu enden. Der Fachmann kann die Härtungsmethode, welche für jeden  
Einzelfall besonders gut geeignet ist aufgrund seines allgemeinen Fachwissens  
gegebenenfalls unter Zuhilfenahme einfacher Vorversuche ermitteln.

Die erfindungsgemäßen Mehrschichtlackierungen ML weisen ein hervorragendes  
20 Eigenschaftsprofil auf, das hinsichtlich der Mechanik, Optik,  
Korrosionsbeständigkeit und Haftung sehr gut ausgewogen ist. So weisen die  
erfindungsgemäßen Mehrschichtlackierungen ML die vom Markt geforderte hohe  
optische Qualität und Zwischenschichthaftung auf und werfen keine Probleme  
wie mangelnde Schwitzwasserbeständigkeit der Füllerschichten, Rißbildung  
25 (mudcracking) in den Basislackierungen oder Verlaufsstörungen oder  
Oberflächenstrukturen in den Klarlackierungen auf.

Insbesondere weist die erfindungsgemäße Mehrschichtlackierung ML einen  
hervorragenden Metallic-Effekt, einen hervorragenden D.O.I. (distinctiveness of  
30 the reflected image) und eine hervorragende Oberflächenglätte, auf. Sie ist

witterungsstabil, resistent gegenüber Chemikalien und Vogelkot und kratzfest und zeigt ein sehr gutes Reflow-Verhalten.

Ein weiterer wesentlicher Vorteil ist die sehr gute Überlackierbarkeit der  
5 erfindungsgemäßen Mehrschichtlackierung ML auch ohne Anschleifen. Dadurch kann sie leicht mit üblichen und bekannten hochkratzfesten Beschichtungsstoffen auf der Basis organisch modifizierter Keramikmaterialien beschichtet werden.

Nicht zuletzt erweist es sich aber als ganz besonderer Vorteil, daß mit Hilfe der  
10 vorstehend beschriebenen Verfahren eine Mehrschichtlackierung realisiert werden kann, welche ausschließlich auf den erfindungsgemäßen Beschichtungsstoffen basiert.

Demzufolge weisen auch die erfindungsgemäßen Substrate besondere Vorteile  
15 wie eine längere Gebrauchsdauer, einen besseren ästhetischen Eindruck beim Betrachter und eine bessere technologische Verwertbarkeit auf.

## Beispiele

### 20 Beispiel 1

#### Die Herstellung des erfindungsgemäßen Polyesters 1

In einen 4 Liter-Edelstahlreaktor, ausgerüstet mit Rührer, Rückflußkühler,  
25 Wasserabscheider und regelbarer Heizung, wurden 195 Gewichtsteile Hexandiol-1,6, 720 Gewichtsteile Trimethylolpropan, 334 Gewichtsteile 2,4-Diethyloctan-1,5-diol, 131 Gewichtsteile Isononansäure, 1272 Gewichtsteile Hexahydrophthalsäureanhydrid und 104 Gewichtsteile Xylol eingewogen. Die resultierende Mischung wurde langsam auf maximal 225 °C aufgeheizt und bei  
30 dieser Temperatur bis zu einer Säurezahl von 16 mg KOH/g und einer Viskosität von 12 dPas (60 %ig in Solventnaphtha) kondensiert. Die resultierende

Reaktionsmischung wurde anschließend abkühlen lassen und bei 130 °C mit 1530 Gewichtsteilen Solventnaphtha angelöst. Die resultierende Lösung des erfindungsgemäßen Polyesters wies einen Festkörpergehalt von 58,5 Gew.-%, eine Säurezahl von 16,3 mg KOH/g und eine Viskosität von 11 dPas (Original) auf.

## Beispiel 2

### Die Herstellung des erfindungsgemäßen Polyesters 2

In einen 4 Liter-Edelstahlreaktor, ausgerüstet mit Rührer, Rückflußkühler, Wasserabscheider und regelbarer Heizung, wurden 383 Gewichtsteile Trimethylolpropan, 355 Gewichtsteile 2,4-Diethyloctan-1,5-diol, 69 Gewichtsteile Isononansäure, 676 Gewichtsteile Hexahydrophthalsäureanhydrid und 59 Gewichtsteile Xylol eingewogen und langsam auf maximal 225 °C aufgeheizt und bei dieser Temperatur bis zu einer Säurezahl von 17 mg KOH/g und einer Viskosität von 12 dPas (60 %ig in Solventnaphtha) kondensiert. Die resultierende Reaktionsmischung wurde anschließend abkühlen lassen und bei 130 °C mit 840 Gewichtsteilen Solventnaphtha angelöst. Die resultierende Lösung des erfindungsgemäßen Polyesters wies einen Festkörpergehalt von 59,5 Gew.-%, eine Säurezahl von 17,1 mg KOH/g und eine Viskosität von 13 dPas (Original) auf.

## Beispiel 3

25

### Die Herstellung des erfindungsgemäßen Klarlacks 1

In ein Rührgefäß mit mechanischem Rührer wurden 68,6 Gewichtsteile des erfindungsgemäßen Polyesters 1 gemäß Beispiel 1, 1,0 Gewichtsteile Tinuvin® 292 (Lichtschutzmittel der Firma Ciba-Geigy), 1,5 Gewichtsteile Tinuvin® 1130 (Lichtschutzmittel der Firma Ciba-Geigy), 10 Gewichtsteile Butyldiglykolacetat,

9 Gewichtsteile Butylglykolacetat, 7 Gewichtsteile Methoxypropylacetat, 9,3 Gewichtsteile Butylacetat und 0,2 Gewichtsteile BYK® 310 (Verlaufmittel der Firma Byk) eingewogen und vermischt. Zur resultierenden Mischung wurden kurz vor der Applikation 24,1 Gewichtsteile eines Vernetzungsmittels auf der Basis von Hexamethylendiisocyanat gegeben, wonach das Zweikomponentensystem homogenisiert wurde.

#### Beispiel 4

#### 10 Die Herstellung der erfindungsgemäßen Mehrschichtlackierung ML 1

Für die Herstellung der erfindungsgemäßen Mehrschichtlackierung ML wurden übliche und bekannte Prüftafeln aus Stahl verwendet, welche mit einer Elektrotauchlackierung, hergestellt aus einem handelsüblichen Elektrotauchlack, und mit einer Füllerschicht, hergestellt aus einem handelsüblichen Füller, lackiert waren. Auf die Füllerschicht wurde in üblicher und bekannter Weise ein handelsüblicher Wasserbasislack von BASF Coatings AG mit einer Schichtdicke von 12 - 15 µm aufgetragen und 10 Minuten bei 80°C abgelüftet. Abschließend wurde der erfindungsgemäß Klarlack 1 des Beispiels 3 mit einer Schichtdicke von 40 - 45µm appliziert, wonach der Basislack und der Klarlack während 20 Minuten bei 140°C gehärtet wurden (naß-in-naß-Verfahren).

Die erfindungsgemäßen Mehrschichtlackierung ML erwies sich als außerordentlich beständig gegenüber Kondenswasser: Kondenswasser-Konstantklimatest nach DIN 50017 und 53209: keine Blasen, Kennzahl 0.

Auch die Zwischenschichthaftung war hervorragend: Gitterschnitt mit Tesaabriß nach DIN EN ISO 2409: GT 0.

Die Verformbarkeit der Lackierung nach DIN EN ISO 1520: 1995-04 war ebenfalls sehr gut: Erichsentiefung: 6,2 mm.

Diese Werte belegen die Vorteilhaftigkeit der erfindungsgemäßen Mehrschichtlackierung, des erfindungsgemäßen Klarlacks und des erfindungsgemäßen Polyesters.

5

### **Beispiel 5**

#### **Die Herstellung des erfindungsgemäßen Klarlacks 2**

10 Beispiel 2 wurde wiederholt, nur daß anstelle des erfindungsgemäßen Polyesters 1 gemäß Beispiele 1 der erfindungsgemäße Polyester 2 gemäß Beispiel 2 verwendet wurde.

### **Beispiel 6**

15

#### **Die Herstellung der erfindungsgemäßen Mehrschichtlackierung ML 2**

Beispiel 4 wurde wiederholt, nur das anstelle des erfindungsgemäßen Klarlacks 1 gemäß Beispiel 3 der erfindungsgemäße Klarlack 2 gemäß Beispiel 5 verwendet  
20 wurde. Es resultierten die gleichen vorteilhaften Ergebnisse.



## Oligomere und Polymere auf der Basis von Diethyloctandiolen, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung

### Patentansprüche

- 5 1. Oligomere und Polymere, die mindestens ein stellungsisomeres Diethyloctandiol als Monomerbaustein enthalten.
2. Oligomere und Polymere nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß  
10 das stellungsisomere Diethyloctandiol ein 2.3-, 2.4-, 2.5-, 2.6-, 2.7-, 3.4-, 3.5-, 3.6- oder 4.5-Diethyloctandiol ist.
3. Oligomere und Polymere nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß das stellungsisomere Diethyloctandiol ein 2.4-Diethyloctandiol ist.
- 15 4. Oligomere und Polymere nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß das stellungsisomere Diethyloctandiol ein Diethyloctan-1.2-, -1.3-, -1.4-, -1.5-, -1.6-, -1.7-, -1.8-, -2.3-, -2.4-, -2.5 -, -2.6-, -2.7-, -2.8-, -3.4-, -3.5-, -3.6-, -3.7-, -3.8 -, -4.5-, -4.6-, -4.7-, -4.8-, -  
20 5.6 -, -5.7-, -5.8-, -6.7-, -6.8- oder -7.8-diol ist.
5. Oligomere und Polymere nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß das stellungsisomere Diethyloctandiol ein Diethyloctan-1.5-diol ist.
- 25 6. Oligomere und Polymere nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß das stellungsisomere Diethyloctandiol 2.4-Diethyloctan-1.5-diol ist.
7. Oligomere und Polymere nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß es sich um Polyadditionsharze und/oder  
30 Polykondensationsharze handelt.

8. Oligomere und Polymere nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Polyadditionsharze und/oder Polykondensationsharze Polyether, Polyester, Polycarbonate, Polyurethane, Polyharnstoffe, Polyamide, Polyimide oder Copolymere sind, die Ether -, Ester -, Carbonat -, Urethan-, Harnstoff-, Amid- und/oder Imidgruppen in den Oligomer- und/oder Polymerketten enthalten.
9. Oligomere und Polymere nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Polyadditionsharze und/oder Polykondensationsharze Polyester, Polyurethane, Polyester-co-polyether, Polyester-co-polycarbonate, Polyester-co-polyurethane, Polyester-co-polyamide, Polyester-co-polyharnstoffe oder Polyester-co-polyimide sind.
10. Oligomere und Polymere nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß sie linear und/oder verzweigt und/oder blockartig, kammartig und/oder statistisch aufgebaut sind, eine Kern-Schale-Struktur aufweisen und/oder als vernetzte Mikroteilchen vorliegen.
11. Oligomere und Polymere nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß sie
- funktionelle Gruppen, die mit komplementären funktionellen Gruppen, die sich in den Oligomeren und Polymeren selbst und/oder in getrennt hiervon vorliegenden Verbindungen befinden, Vernetzungsreaktionen eingehen, und/oder
  - funktionelle Gruppen, die bei der Einwirkung von aktinischer Strahlung miteinander oder mit anderen Gruppen reagieren,
- aufweisen.

12. Oligomere und Polymere nach einem der Ansprüche 1 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß sie mit olefinisch ungesättigten Monomeren gepropft sind.
- 5 13. Verwendung der Oligomeren und Polymeren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 12 für die Herstellung von Formmassen, Klebstoffen und Beschichtungsstoffen, insbesondere Lacken.
- 10 14. Formmassen, Klebstoffe und Beschichtungsstoffe, dadurch gekennzeichnet, daß sie mindestens ein Oligomer und/oder Polymer gemäß einem der Ansprüche 1 bis 12 enthalten.
- 15 15. Verwendung der Formmassen, Klebstoffe und Beschichtungsstoffe gemäß Anspruch 14, für die Herstellung von Formteilen, Folien, Fasern, Klebschichten und dekorativen und/oder schützenden Beschichtungen, insbesondere Lackierungen.
- 20 16. Formteile, Folien und Fasern, herstellbar aus Formmassen gemäß Anspruchs 14.
17. Klebschichten, herstellbar aus Klebstoffen gemäß Anspruch 14.
- 25 18. Beschichtungen, insbesondere Lackierungen, herstellbar aus Beschichtungsstoffen, insbesondere Lacken, gemäß Anspruch 14.
19. Substrate, welche mindestens eine Klebschicht gemäß Anspruch 17 und/oder mindestens eine Beschichtung, insbesondere Lackierung, gemäß Anspruch 18 aufweisen.
- 30 20. Substrate nach Anspruch 19, dadurch gekennzeichnet, daß es sich um Formteile, Folien und Fasern gemäß Anspruch 16,

Kraftfahrzeugkarosserien, industrielle Bauteile, inklusive  
elektrotechnische Bauteile, Coils und Emballagen, oder Möbel handelt.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/EP 00/07890

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C08G63/12 C08G18/42 C09D167/00 C08L101/00 C09D201/00  
C09J201/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C08G C09D

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

WPI Data, PAJ, CHEM ABS Data, EPO-Internal

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DE 198 26 715 A (BASF AG) 28 January 1999 (1999-01-28)	1-8, 10, 11, 13-15, 17-19 20
Y	claims 1-5; example page 4, line 31 - line 41 ---	
Y	DE 40 24 204 A (BASF LACKE & FARBEN) 6 February 1992 (1992-02-06) cited in the application abstract; claim 15 ---	20
X	GB 778 924 A (NATIONAL DISTILLERS PRODUCTS CORP.) 17 July 1957 (1957-07-17) claims 1,6; example I page 4, line 75 - line 85 ---	1,2,4, 7-10
	-/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C

☒ Patent family members are listed in annex

### \* Special categories of cited documents

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance, the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance, the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- \*Z\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

8 December 2000

Date of mailing of the international search report

19/12/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel (+31-70) 340-2040 Tx 31 651 eponi  
Fax (+31-70) 340-3016

Authorised officer

Krische, D

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

nal Application No

/EP 00/07890

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	EP 0 940 459 A (BASF COATINGS AG) 8 September 1999 (1999-09-08) claims 1,6-9,14,15,36; example page 2, line 5 -page 3, line 21 page 8, line 20 - line 31 -----	1-9, 18-20
A	DATABASE WPI Section Ch, Week 199801 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class A23, AN 1998-004239 XP002155007 -& JP 09 272731 A (KURARAY CO LTD), 21 October 1997 (1997-10-21) cited in the application abstract -----	1,7-11, 13

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/07890

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 19826715 A	28-01-1999	NONE	
DE 4024204 A	06-02-1992	AT 115171 T BR 9106715 A CA 2087338 A DE 59103830 D DK 541604 T WO 9202590 A EP 0541604 A ES 2067946 T JP 7033496 B US 5326820 A	15-12-1994 13-07-1993 01-02-1992 19-01-1995 08-05-1995 20-02-1992 19-05-1993 01-04-1995 12-04-1995 05-07-1994
GB 778924 A		NONE	
EP 0940459 A	08-09-1999	DE 19809643 A	09-09-1999
JP 9272731 A	21-10-1997	NONE	





# INTERNATIONALER RESEARCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die der gleichen Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/07890

Im Recherchenbericht angeführtes Patentedokument		Datum der Veröffentlichung	Mitgliedern der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
DE 19826715	A	28-01-1999	KEINE		
DE 4024204	A	06-02-1992	AT	115171 T	15-12-1994
			BR	9106715 A	13-07-1993
			CA	2087338 A	01-02-1992
			DE	59103830 D	19-01-1995
			DK	541604 T	08-05-1995
			WO	9202590 A	20-02-1992
			EP	0541604 A	19-05-1993
			ES	2067946 T	01-04-1995
			JP	7033496 B	12-04-1995
			US	5326820 A	05-07-1994
GB 778924	A		KEINE		
EP 0940459	A	08-09-1999	DE	19809643 A	09-09-1999
JP 9272731	A	21-10-1997	KEINE		

